

Direkte Messung von Myonium-Hyperfein-Frequenzen in Diamant, Si, Ge und Quarz

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung
der Philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der
Philosophischen Fakultät II
der Universität Zürich

von
EUGEN HOLZSCHUH
aus Lonsee (BRD)

Begutachtet von Prof. Dr. W. Kündig

Zürich 1982

Zentralstelle der Studentenschaft

Direkte Messung von Myonium-Hyperfein-Frequenzen in Diamant, Si, Ge und Quarz

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung
der Philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der
Philosophischen Fakultät II
der Universität Zürich

von

EUGEN HOLZSCHUH
aus Lonsee (BRD)

Begutachtet von Prof. Dr. W. Kündig

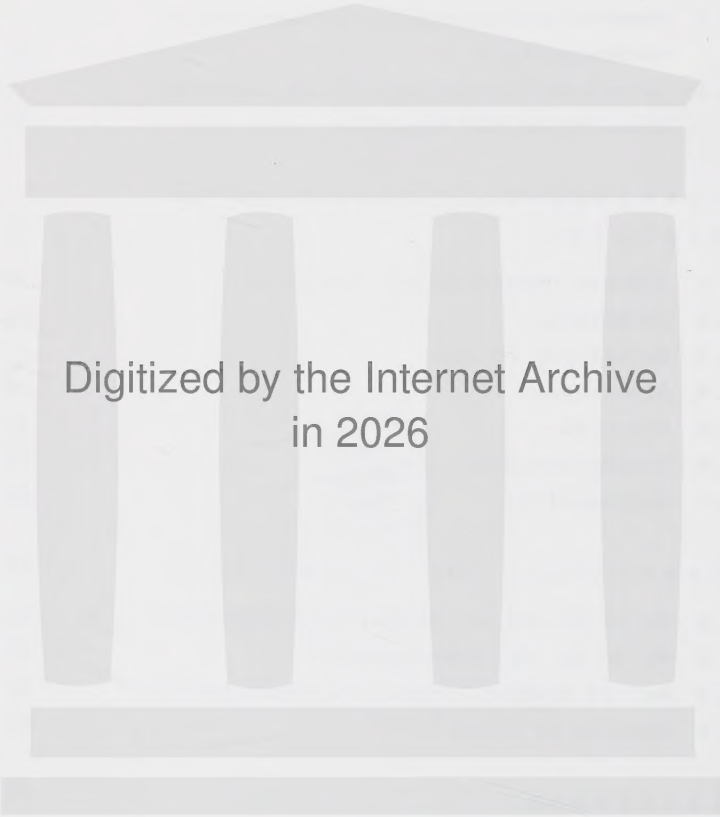
Zürich 1982

Zentralstelle der Studentenschaft



INHALTSVERZEICHNIS

I.	EINLEITUNG	5
II.	THEORETISCHE BETRACHTUNGEN	12
	2.1 Temperaturabhängigkeit der Hyperfein- wechselwirkung	12
	2.2 Spin-Hamilton-Operatoren und zeitliche Entwicklung des Myonspins	22
III.	EXPERIMENTELLE METHODEN UND APPARATUR	28
	3.1 Effekte endlicher Zeitauflösung	28
	3.2 Detektoren	29
	3.3 Detektoranordnung	32
	3.4 Elektronik	34
	3.5 Kryostat	38
	3.6 Hochdruckanlage	39
	3.7 Datenanalyse	41
IV.	EXPERIMENTE UND ERGEBNISSE	45
	4.1 μ in Si und Ge, Temperaturabhängigkeit	45
	4.2 μ in Si, Druckabhängigkeit	54
	4.3 μ^* in Diamant, Temperaturabhängigkeit	58
	4.4 Myonium in Quarz	62
V.	DISKUSSION	71
VI.	ZUSAMMENFASSUNG	75
	LITERATURVERZEICHNIS	77
	VERDANKUNGEN	82



Digitized by the Internet Archive
in 2026

1. EINLEITUNG

Positive Myonen sind Elementarteilchen, die verwendet werden können, um spezielle Probleme der Festkörperphysik zu untersuchen. Zum einen handelt es sich dabei um die Diffusion leichter Teilchen (des Myons selbst) und der Messung innerer Magnetfelder am Ort des Myons, zum anderen um die Bildung von Myonium. Myonium ist ein exotisches Atom, bestehend aus einem positiven Myon als Kern und einem gebundenen Elektron. Häufig betrachtet man in diesem Zusammenhang das Myon als ein leichtes Isotop des Protons. Das Myon ist also weniger eine Sonde für allgemeine Festkörpereigenschaften. Vielmehr ist es mit dem Myon möglich, das Verhalten und die Zustände eines leichten, positiven Teilchens im Festkörper zu studieren.

Myonen entstehen aus dem Zerfall von Pionen gemäss dem Schema $\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu$ nach einer mittleren Pionlebensdauer $\tau_\pi = 26 \text{ ns}$. Da die Pionen spinlose Teilchen sind, die Neutrinos die Helizität-1 haben und die Myonen einen Spin von $1/2$ besitzen, verlangt die Drehimpulserhaltung, dass die Myonen im Schwerpunktsystem der Pionen 100% spinpolarisiert sind. Die Pionen selber entstehen bei Kernreaktionen, etwa der Art $p + p \rightarrow p + n + \pi^+$, wenn genügend Energie zur Verfügung steht. Am Schweizerischen Institut für Nuklearforschung (SIN), an dem die Experimente für diese Arbeit gemacht wurden, wird für diesen Zweck ein Protonenstrahl mit einer Energie von 590 MeV und einer Stromstärke von typisch 100 μA auf ein Target (üblicherweise Beryllium) gelenkt. Die erzeugten Pionen zerfallen bei relativistischen Geschwindigkeiten im Flug, und die Myonen sind daher bezüglich eines Laborsystems nicht notwendigerweise polarisiert. Durch geeignete Impulsselektion für Pionen und Myonen gelingt es jedoch, Teilstrahlen so auszuwählen, dass am Ende des Strahlwegs ein hochpolarisierter Myonstrahl zur Verfügung steht. Typische Werte für die Myonpolarisation am SIN liegen im Bereich von 70 - 80%.

Das Myon ist instabil und zerfällt hauptsächlich nach dem Schema $\mu^+ \rightarrow e^+ + \bar{\nu}_\mu + \nu_e$ in ein hochenergetisches Positron mit einer Maximalenergie von 52.3 MeV und zwei Neutrini. Seine mittlere Lebensdauer beträgt 2.2 μ s. Weitere Myoneigenschaften sind in Tabelle 1.1 zusammengestellt. Wichtig für unsere Anwendung ist, dass der Myonzerfall anisotrop ist. Die Winkelverteilung der Positronen ist gegeben durch

$$\frac{dN}{d\Omega} \propto (1 + A \cos(\theta)) \quad , \quad (1.1)$$

wobei θ den Winkel zwischen der Myonspinpolarisation (im weiteren meist kurz Myonspin) und dem Positronimpuls bezeichnet. Falls alle Positronen unabhängig von ihrer Energie registriert werden, gilt für die Asymmetrie $A = P/3$, wobei P der Myonspinpolarisationsgrad ist. Die Positronen werden also vorzugsweise in Richtung des Myonspins emittiert, und diese Tatsache erlaubt es, die zeitliche Entwicklung der Polarisation von Myonen in einer Probe zu verfolgen. Abb. 1.1 zeigt hierfür das Prinzip einer Apparatur. Einfallende Myonen mit einer Polarisation parallel zum Strahl werden in einem Moderator (degrader) abgebremst und dann in der Probe gestoppt. Dabei passieren sie

Tabelle 1.1 : Eigenschaften des Myons. Nach Ref. [1] und [2].

Masse $m_\mu = 105.6595(3) \text{ MeV}/c^2$

$$= 206.7686(3) \times m_e$$

$$= 0.1126123(6) \times m_p$$

Spin $I_\mu = 1/2$

Lebensdauer $\tau_\mu = 2.19713(8) \mu\text{s}$

Magnetisches Moment $\mu_\mu = 2.80272(2) \times 10^{-11} \text{ eV/G}$

$$= 3.183345(3) \times \mu_p$$

g - Faktor $g_\mu = 2 \times 1.001165922(9)$

Gyromagnetisches Verhältnis $\gamma_\mu/2\pi = 13.55373(10) \text{ MHz/kg}$

Hyperfeinfrequenz von

Myonium in Vakuum $\nu_0 = 4463.3022(14) \text{ MHz}$

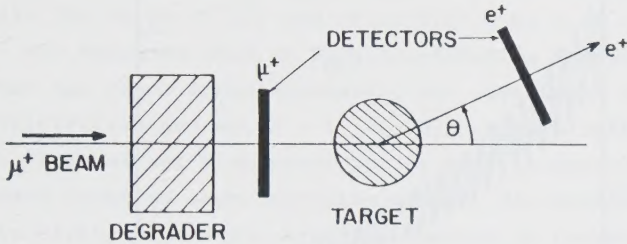


Abb. 1.1: Schematische Anordnung der Detektoren in einem μ SR-Experiment.

einen Detektor, mit dessen Signal eine Uhr gestartet wird. Nach einer Zeit t zerfällt das Myon und falls das Positron in Richtung des zweiten Detektors emittiert wird, wird mit dessen Signal die Uhr gestoppt. Diese Ereignisse werden als Funktion von t in einem Vielkanalanalysator akkumuliert. Ein solches Messprinzip impliziert offensichtlich, dass zu einer bestimmten Zeit höchstens ein Myon in der Probe sein darf. Während sich das Myon in der Probe befindet, kann sein magnetisches Moment mit inneren oder angelegten Feldern wechselwirken und damit seine Polarisation verändern. Als Spektrum erhält man also eine exponentielle Zerfallskurve, der wegen der Anisotropie noch ein der Myonspinsbewegung entsprechendes Signal überlagert ist. Im einfachen Fall, dass nur ein homogenes, transversales Magnetfeld wirkt, rotiert die Polarisation um die Feldrichtung, und das Spektrum ist eine mit einer Cosinusfunktion modulierte Zerfallskurve (Abb. 1.2). Davon leitet sich auch der Name der Methode ab: Myon - Spin - Rotation oder kurz μ^+ SR in Analogie zu ESR und NMR.

Für den Fall, dass sich Myonium bildet, wird der dominierende Einfluss auf den Myonspin durch die Kontakt- oder Hyperfeinwechselwirkung HFWW des gebundenen Elektrons ausgeübt. Abb. 1.3 zeigt die Energieniveaus von sogenanntem normalen Myonium Mu als Funktion eines angelegten Magnetfeldes B (Breit-Rabi-Dia-

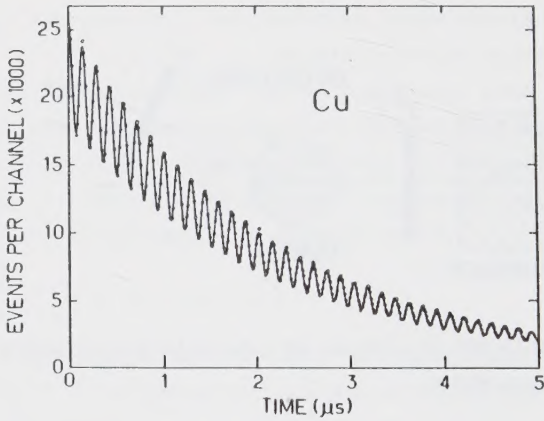


Abb. 1.2: Typisches μ SR-Spektrum für eine Cu-Probe bei 500 G.

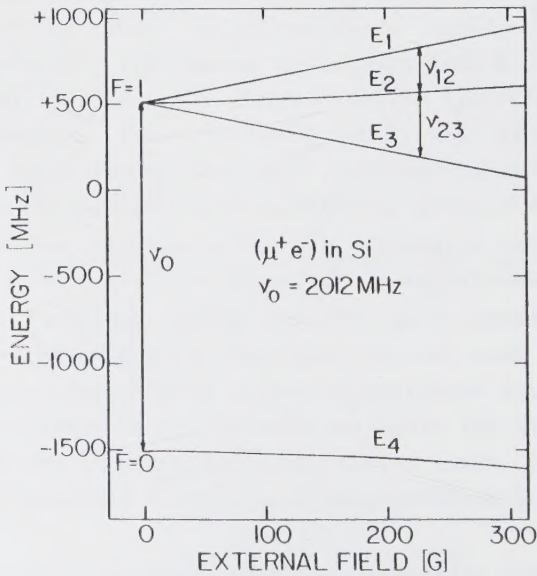


Abb. 1.3: Hyperfeinniveaus von Mu in Si als Funktion eines angelegten Magnetfeldes. Pfeile zeigen beobachtbare Übergänge bei der direkten Methode (ν_0) und bei der Zweifrequenzen-Methode (ν_{12} und ν_{23}).

gramm für zwei Spin $1/2$ Teilchen). Die angenommene Stärke der HFWW gilt für Mu in Si $|3|$ und entspricht etwa 0.45 des Vakuumwertes. Die Energien sind in Frequenzeinheiten angegeben. Für $B = 0$ hat man einen Singulettzustand mit Gesamtspin $F = 0$ und einen Triplettzustand mit $F = 1$. Die Hyperfeinaufspaltung $h\nu_0$ ist proportional zur Elektrondichte $|\psi(0)|^2$ am Myonort und ist daher eine wichtige experimentelle Grösse, die Auskunft gibt über die elektronische Struktur von Myonium im Festkörper und die mit theoretischen Rechnungen verglichen werden kann.

Im Nullfeld oszilliert der Myonspin mit der Triplett-Singulettübergangsfrequenz ν_0 und diese Frequenz kann daher im Prinzip mit der μ SR-Methode beobachtet werden. Wir wollen dieses Verfahren als die direkte Methode zur Bestimmung von ν_0 bezeichnen. Üblicherweise geht man jedoch anders vor. In einem äusseren Magnetfeld spaltet das Triplettniveau in drei Niveaus mit Magnetquantenzahlen $m_F = \pm 1, 0$ auf, was zu zwei beobachtbaren μ SR-Frequenzen, in Abb. 1.3 mit ν_{12} und ν_{23} bezeichnet, führt. Zusätzlich gibt es noch $F=1$ nach $F=0$ Übergänge, die aber wegen ungenügender apparativer Zeitauflösung unbeobachtet bleiben. Die Summe der beiden Frequenzen $\Sigma\nu = \nu_{12} + \nu_{23} \propto B$ ist unabhängig von ν_0 und im wesentlichen durch das angelegte Feld gegeben. Zur Bestimmung von ν_0 ist lediglich die Differenz $\Delta\nu = \nu_{23} - \nu_{12}$ wesentlich, es gilt $\nu_0 \propto B^2/\Delta\nu$. Dieses Verfahren wurde zum ersten Mal von Gurevich et al. [4] angewendet und wird üblicherweise als Zweifrequenzen-Methode bezeichnet. Wie aus Abb. 1.3 hervorgeht, unterscheiden sich die beiden genannten Frequenzen für Felder bis einige hundert Gauss nur wenig und ihre Differenz ist daher relativ ungenau bestimmt. Der Verwendung grösserer Felder zur Erhöhung der Genauigkeit stehen zwei Schwierigkeiten entgegen: a) Die Signalamplitude für die Frequenz ν_{23} nimmt bei höheren Feldern rasch ab. b) Eine gute Zeitauflösung der Detektoren und die Verwendung hoher Felder sind schlecht miteinander verträglich. Übliche μ SR-Apparaturen haben daher auch eine Zeitauflösung nicht besser als ca. 1 ns, was die Beobachtung von Frequenzen viel grösser als 500 MHz

unmöglich macht. Zudem zeigt die Erfahrung, dass bei dieser Methode die Genauigkeit sehr stark leidet, wenn die Signale eine zeitliche Dämpfung haben [5].

Die genannten Einschränkungen gelten offensichtlich nicht oder nur in geringerem Mass für die direkte Methode. Insbesondere ist der Einfluss der Dämpfung geringer, da bei gegebener relativen Genauigkeit eine höhere Frequenz sich aus einer Messung über ein kürzeres Zeitintervall bestimmen lässt.

Ziel dieser Arbeit war der Aufbau einer Apparatur zur Messung der Hyperfeinfrequenz mit der direkten Methode und deren Anwendung auf die Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Myonium-HFWW. Wie gezeigt werden wird, ist es mit heute zur Verfügung stehenden Komponenten wie Plastikszintillatoren und schnellen Photomultipliern für Detektoren sowie schneller Impulselektronik möglich, eine Zeitauflösung zu erreichen, die die Beobachtung von Signalen mit Frequenzen von einigen GHz erlaubt.

Verschiedene Mechanismen können eine Verschiebung der HFWW mit der Temperatur erzeugen. Ein eher trivialer Effekt kann durch die thermische Gitterausdehnung entstehen. Interessanter sind dynamische Einflüsse auf die HFWW durch lokale Schwingungen oder Diffusion von Myonium und durch die thermischen Schwingungen der Gitteratome. Letztere erzeugen Verzerrungen der lokalen Umgebung von Myonium. In Kap. 2.1 werden mehrere Kopplungsarten solcher Verzerrungen an Myonium diskutiert. Eine genauere Analyse sowie die Bestimmung der absoluten Grösse der zu erwartenden Effekte ist allerdings schwierig, da Rechnungen in zweiter Ordnung Störungstheorie notwendig sind. Diese Betrachtungen sind daher auch eher qualitativer Natur. Im Grenzfall langer Wellen kann jedoch gezeigt werden, dass die Form der Temperaturabhängigkeit der HFWW auf Grund von Gitterschwingungen weitgehend unabhängig von mikroskopischen Details ist und die Stärke im wesentlichen durch eine einzige Kopplungskonstante charakterisiert werden kann.

Kap. 2.2 enthält Berechnungen der Uebergangsfrequenzen und der zeitlichen Entwicklung der Myonspinpolarisation unter dem Einfluss einer anisotropen HFWW. Diese Ergebnisse werden zur Interpretation der Spektren, vor allem für Myonium in Quarz, gebraucht.

Eine Beschreibung der Apparatur sowie der benutzten experimentellen Methoden wird in Kap. 3 gegeben. Dies beinhaltet eine Analyse des Einflusses endlicher apparativer Zeitauflösung auf hochfrequente Signale (Kap. 3.1) sowie die Konstruktion der Detektoren (Kap. 3.2) und den Aufbau der Elektronik (Kap. 3.4). Eine Hochdruckanlage (Kap. 3.6) erlaubte μ SR-Experimente bis zu einem Druck von 1.5 kbar.

Die Experimente sind in Kap. 4 dargestellt. Eine zusammenfassende Diskussion findet man in Kap. 5. Gemessen wurde die Hyperfeinfrequenz von normalem Myonium μ in Si und Ge als Funktion der Temperatur (Kap. 4.1). Durch eine Messung mit äusserem Druck bei konstanter Temperatur für μ in Si (Kap. 4.2) wurde untersucht, wie stark die HFWW von der Gitterkonstante abhängt. Daraus folgt, wie die thermische Gitterausdehnung die Temperaturabhängigkeit der HFWW beeinflussen kann.

Neben dem normalen Myonium μ findet man in den untersuchten Substanzen auch sogenanntes anomales Myonium μ^* [3], charakterisiert durch eine relativ kleine aber stark anisotrope, axial-symmetrische HFWW [6]. μ^* in Diamant [7] konnte über einen überraschend grossen Temperaturbereich (1000 K) untersucht werden. Für die Messungen (Kap. 4.3) wurde unsere "normale" Apparatur [8] benutzt, da alle Uebergangsfrequenzen im Nullfeld kleiner als 400 MHz sind.

Myonium in Quarz [9] hat mit 4500 MHz die grösste bekannte Uebergangsfrequenz im Nullfeld. Die Messungen (Kap. 4.4) zeigen, dass auch hierauf die direkte Methode mit Erfolg angewendet werden kann.

II. THEORETISCHE BETRACHTUNGEN

2.1 Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinwechselwirkung

Befindet sich das gebundene Elektron in Myonium in einem s-Zustand, so lässt sich die HFWW zwischen Elektron- und Myonspin durch einen Spin-Hamilton-Operator der Form

$$H = A \vec{S} \cdot \vec{I} \quad (2.1)$$

ausdrücken, wobei die Kopplungskonstante

$$A = h\nu_0 = \frac{8\pi}{3} g_e g_\mu \mu_B^\mu \mu_B^\mu |\psi(0)|^2 \quad (2.2)$$

proportional ist zur Elektronendichte am Ort des Myons.

Im folgenden soll untersucht werden, welche Effekte eine Temperaturabhängigkeit dieser Grösse verursachen können.

Wir beginnen mit den phänomenologischen Modellen von Wang und Kittel [10] für Myonium Mu in Si und Ge. Diese Modelle stellen bestenfalls eine grobe Annäherung an die Wirklichkeit dar, haben aber den Vorteil, einfach und leicht durchschaubar zu sein. Zudem führen sie als einzige der zur Zeit existierenden Myonium-Modelle zu quantitativen Ergebnissen. Man nimmt dazu an, dass das gebundene Elektron sich in einem effektiven Potential bewegt, das in der Nähe des Myons durch dessen Coulomb Potential und für grosse Abstände durch das mit der statischen Dielektrizitätskonstanten ϵ_0 abgeschirmten Coulomb Potential gegeben ist. Bei mittleren Abständen ist das Potential unbekannt. Die verschiedenen Modelle unterscheiden sich durch den Ansatz, der in diesem Bereich verwendet wird. Beim Kavitätsmodell wird ein scharfer Uebergang angenommen:

$$V(r) = \begin{cases} -e^2 \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{R} + \frac{1}{\epsilon_0 R} \right) & , \quad r < R \\ -e^2 / \epsilon_0 r & , \quad r > R \end{cases} \quad (2.3)$$

Dabei wurde noch eine Konstante addiert, damit das Potential stetig ist. Es gibt zwei symmetrische Zwischengitterplätze für Myonium im Diamantgitter [11], einen mit tetraedrischer und

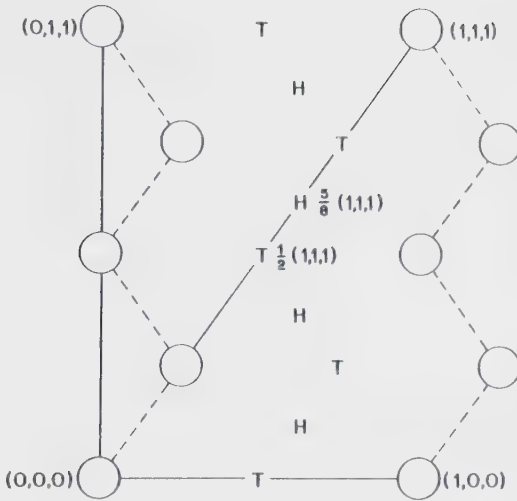


Abb. 2.1: $(0\bar{1}1)$ Ebene des Diamantgitters. H bzw. T bezeichnen Zwischengitterplätze mit hexagonaler bzw. tetraedrischer Symmetrie.

einen mit hexagonaler lokaler Symmetrie (siehe Abb. 2.1). Die entsprechenden Radien werden im Sinne von Wang und Kittel aus der grössten Kugel bestimmt, die auf einen Zwischengitterplatz passt, wenn man sich das Gitter aus sich berührenden harten Kugeln aufgebaut denkt ($R_T = 0.227a$, $R_H = 0.198a$, a Gitterkonstante). Der Reduktionsfaktor

$$f = |\psi(0)|^2 / |\psi(0)|_{\text{Vak}}^2 \quad (2.4)$$

kann nun als Funktion von R aus der Schrödinger Gleichung für das Potential $V(r)$ bestimmt werden (Abb. 2.2).

Eine Temperaturabhängigkeit der gemessenen HFWW kann nun folgendermassen zustandekommen. Durch die thermische Bewegung der Gitteratome fluktuiert der Radius R um einen Gleichgewichtswert. Da das Elektron sich viel schneller bewegt als die Gitteratome, stellt sich die Wellenfunktion entsprechend der momentanen Lage der Gitteratome adiabatisch ein. Gemessen wird also ein thermischer Mittelwert von f , der je nach Krümmung der Funktion $f(R)$

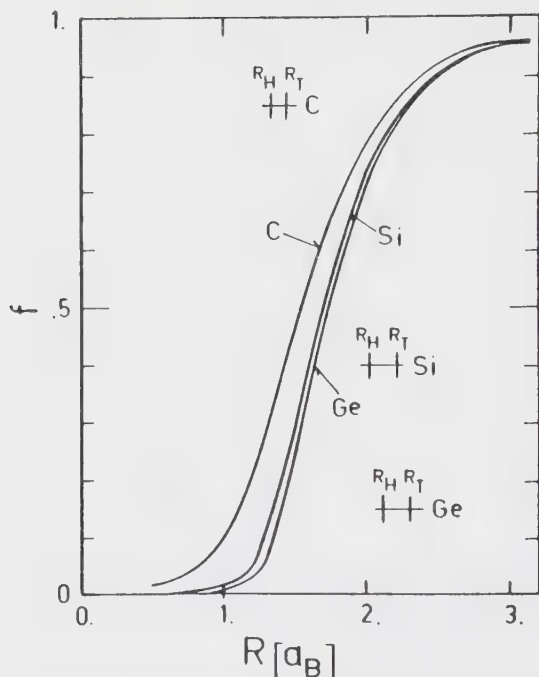


Abb. 2.2: Reduktionsfaktor der HFWW für Mu in Diamant, Si und Ge nach dem Kavitätsmodell (Gl.(2.3)). Kavitätsradius in Einheiten von $a_B = 0.53 \text{ \AA}$. Nach Ref.[12].

mit der Temperatur variieren kann.

Bisher wurde f lediglich für eine sphärisch symmetrische Situation berechnet. Dies kann damit gerechtfertigt werden, dass es bei der Grobheit des Modells genügt, sich die lokale Umgebung sphärisch gemittelt zu denken. Zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit von f ist dies jedoch ungenügend, da sonst bei der thermischen Mittelwertbildung nur ein Bewegungsmodus ("Atmungsmodus") berücksichtigt würde. Wir können uns damit behelfen, dass wir für die Mittelwertbildung f als eine Funktion des Volumens $V \propto R^3$ betrachten. Dies bedeutet, dass sich f bei einer Verzerrung der lokalen Umgebung nicht ändern soll, wenn sich dabei das Volumen nicht ändert. Dies kann damit gerech-

fertigt werden, dass $|\psi|^2$ einer Kontinuitätsgleichung genügt und sich daher wie eine Flüssigkeit verhält. Zudem ist die Annahme exakt für einfache Beispiele wie den anisotropen harmonischen Oszillator oder den rechteckigen Potentialtopf.

Entwicklung von f nach $\delta V = V - V_0$ um den Wert V_0 für ein starres Gitter bis zur zweiten Ordnung und Bildung des thermischen Mittelwertes ergibt mit $f_0 := f(V_0)$

$$\langle f \rangle_T = f_0 \left(1 + \frac{V_0^2}{2f_0} \frac{\partial^2 f}{\partial V^2} \left\langle \left(\frac{\delta V}{V_0} \right)^2 \right\rangle_T \right), \quad (2.5)$$

da $\langle \delta V \rangle_T = 0$.

Wir berechnen den thermischen Mittelwert in einem Kontinuumsmodell. Die Volumenfluktuationen lassen sich dann durch den Verzerrungstensor ϵ_{ij} ausdrücken,

$$\delta V/V_0 = \epsilon_{11} + \epsilon_{22} + \epsilon_{33} \quad (2.6)$$

wobei

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right). \quad (2.7)$$

Mit dieser Darstellung beschränkt man sich auf langwellige Verzerrungen und vernachlässigt optische Phononen, d.h. das Ergebnis ist nur für tiefe Temperaturen anwendbar. Die thermischen Mittelwerte für die ϵ_{ij} verschwinden, nicht jedoch ihre Quadrate. Für einen kubischen Kristall sind nur die folgenden Komponenten ungleich Null:

$$\begin{aligned} \langle \epsilon_{11}^2 \rangle &= \langle \epsilon_{22}^2 \rangle = \langle \epsilon_{33}^2 \rangle \\ \langle \epsilon_{11} \epsilon_{22} \rangle &= \langle \epsilon_{22} \epsilon_{33} \rangle = \langle \epsilon_{11} \epsilon_{33} \rangle \\ \langle \epsilon_{12}^2 \rangle &= \langle \epsilon_{23}^2 \rangle = \langle \epsilon_{13}^2 \rangle. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Benutzt man für die akustischen Phononen ein Debye-Spektrum und setzt zur Abkürzung

$$S(Y) = \frac{1}{60\pi^2} \frac{\hbar}{\rho} \left(\frac{k_B^0 D}{\hbar} \right)^4 \left(\frac{1}{8} + Y^4 \int_0^Y \frac{x^3 dx}{e^x - 1} \right), \quad (2.9)$$

so ergibt sich

$$\begin{aligned}
 \langle \epsilon_{11}^2 \rangle &= 4 \left(\frac{3}{4v_\ell^5} + \frac{1}{v_t^5} \right) S(T/\theta_D) \\
 \langle \epsilon_{11} \epsilon_{22} \rangle &= 2 \left(\frac{1}{v_\ell^5} - \frac{1}{v_t^5} \right) S(T/\theta_D) \\
 \langle \epsilon_{12}^2 \rangle &= 3 \left(\frac{2}{3v_\ell^5} + \frac{1}{v_t^5} \right) S(T/\theta_D) .
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

Dabei bedeuten ρ die Dichte, θ_D die Debye-Temperatur, und v_ℓ, v_t die longitudinale bzw. transversale Schallgeschwindigkeit. Zusammenfassend erhält man somit für die Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinfrequenz ν_0

$$\nu_0(T) = \nu_0(0) \left(1 - C \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} \right) , \tag{2.11}$$

wobei die Konstante C gegeben ist durch

$$C = \frac{-1}{4n^2} \frac{v_0^2}{f_0} \frac{\partial^2 f}{\partial V^2} \left(\frac{\hbar}{\rho v_\ell} \right) \left(\frac{k_B \theta_D}{\hbar v_\ell} \right)^4 \tag{2.12}$$

und der Effekt der Nullpunktsschwingungen ausser acht gelassen wurde.

Eine Formel des Typs von Gl.(2.11) wurde von Šimánek und Orbach [13] für Mn^{3+} in MgO angegeben. Der zugrundeliegende Mechanismus für die Temperaturabhängigkeit der HFWF war jedoch ein anderer, und wir wollen nun untersuchen, wie weit diese Idee auf unseren Fall übertragbar ist. Šimánek und Orbach betrachten ein paramagnetisches Ion im Zentrum eines Oktaeders, gebildet aus entgegengesetzt geladenen Ionen. Durch Gitterschwingungen entsteht ein nichtkubisches, dynamisches Kristallfeld am Ort des paramagnetischen Ions. Dieses Feld wird nach den ϵ_{ij} entwickelt. Für zwei Ionen im Gleichgewichtsabstand $\vec{R}$ lautet diese Entwicklung allgemein [14]:

$$V = V_0 + R_\beta \frac{\partial V}{\partial R_\alpha} \epsilon_{\alpha\beta} + \frac{1}{2} R_\gamma R_\delta \frac{\partial^2 V}{\partial R_\alpha \partial R_\beta} \epsilon_{\alpha\gamma} \epsilon_{\beta\delta} + \dots \tag{2.13}$$

Sind mehrere Ionen an der Wechselwirkung beteiligt, ist von Gl. (2.13) eine entsprechende Summe zu bilden. Unter Berücksichtigung der lokalen Symmetrie kann dieser Ausdruck dann meist beträchtlich vereinfacht werden und das so erhaltene Potential wird als Störoperator für eine Störungsrechnung des Grundzustandes ψ_0 des paramagnetischen Ions benutzt:

$$\psi = \psi_0 - \sum_{n>0} \frac{\langle \psi_n | V | \psi_0 \rangle}{E_n - E_0} \psi_n + \dots \quad (2.14)$$

Die temperaturabhängige HFWW erhält man aus dem thermischen Mittelwert von $|\psi(0)|^2$ (für Myonium). Da jedoch dann die Terme linear in ϵ_{ij} verschwinden, muss für eine konsequente Rechnung in Gl. (2.14) die zweite Ordnung mitberücksichtigt werden, was zu sehr unübersichtlichen Ausdrücken führt. Zudem ergeben solche Kristallfeld-Rechnungen in der Regel keine gute Uebereinstimmung der absoluten Konstanten mit den experimentellen Werten. Wir wollen daher dieses Programm nicht durchführen. Es ist jedoch klar, dass in niedrigster Ordnung die Änderung der HFWW proportional zu $\langle \epsilon^2 \rangle$ ist und Gl. (2.11) mit einer geeignet definierten Konstanten C auch für diesen Mechanismus gilt.

In den letzten Jahren ist eine ganze Reihe von theoretischen Arbeiten publiziert worden, die sich mit Wasserstoff bzw. Myonium in Si und Ge beschäftigen. Ein Teil davon befasst sich mit der allgemeinen Frage, wieso H bzw. Mu tiefliegende, stark lokalisierte Donatorzustände bilden [15], [16]. Es wird gezeigt, dass das Vorhandensein mehrerer Leitungsband-Minima zu einer starken Mischung der entsprechenden Bloch-Zustände durch ein Punktladungspotential führt und die Effektive-Massen-Näherung daher nicht mehr anwendbar ist. Die Aussagen sind jedoch nur qualitativ.

Pickett et al. [17] benutzen eine selbstkonsistente Pseudopotential Methode, um die elektronische Struktur von H in Ge zu bestimmen. Berechnet wird die Bandstruktur für einen Kristall, der aus Einheitszellen mit 8 bzw. 54 Ge-Atomen und einem Proton

an einem Tetraederplatz besteht. Gefunden wird ein tief im Valenzband liegender und stark lokalisierter Zustand für H. Die Autoren sind in ihren Aussagen jedoch sehr vorsichtig und behaupten lediglich, dass dieser Zustand 1 - 6 eV unter dem Valenzbandmaximum liegt. Ein Wert für $|\psi(0)|^2$ wird nicht angegeben.

Rechnungen wurden auch durchgeführt, um den energetisch stabilen Platz für H in Si zu bestimmen. Singh et al. [18] benutzen die erweiterte Hückel Theorie (EHT) und wenden diese unter anderem auf Modellkristalle mit 30 - 38 Si-Atome und einem H-Atom an. Danach ist der Tetraederplatz die energetisch stabile Position für H und der hexagonale Platz ist lediglich ein Sattelpunkt. Demgegenüber finden Rodriguez et al. [19] mit Hilfe einer Pseudopotential-Methode, dass das Energieminimum um ca. 0.5 Å vom Tetraederplatz weg in Richtung und zu einem der nächsten Si-Atome hin verschoben ist. Für den Tetraederplatz ergibt sich ein stark lokalisierter Zustand mit einer Energie, die einige Zehntel eV unterhalb der Valenzbandkante liegt. Am Platz des Energieminimums dagegen ist das gebundene Elektron stärker delokalisiert und seine Wahrscheinlichkeitsverteilung ist nicht mehr sphärisch symmetrisch.

Die EHT wurde auch von Coker, Lee und Das [20] benutzt, um den Reduktionsfaktor f der HFWW für Myonium in Si und Ge zu berechnen. Für einen Modellkristall aus 30 Gitteratomen und einem Myon (ohne Platzangabe) erhalten die Autoren $f(\text{Si}) = 0.74$ und $f(\text{Ge}) = 0.64$, was auch nicht besser mit den experimentellen Werten ($f(\text{Si}) = 0.45$, $f(\text{Ge}) = 0.53$) übereinstimmt als die Ergebnisse aus den viel einfacheren Modellen von Wang und Kittel. Die EHT kann jedoch dazu benutzt werden, um zumindest qualitativ eine Temperaturabhängigkeit der HFWW zu beschreiben. Man betrachte einen Modellkristall mit N Atomen. Dessen Molekülorbitale ψ_μ werden nach Atomorbitalen χ_i entwickelt:

$$\psi_\mu = \sum_i c_{\mu i} \chi_i \quad (2.15)$$

Coker, Lee und Das benutzten als χ_i die $3s$, $3p_x$, $3p_y$ und $3p_z$ Orbitale für die Si-Atome und für Myonium $1s$, $2s$, $2p_x$, $2p_y$ und $2p_z$ Wasserstoff-Wellenfunktionen. Die Entwicklungskoeffizienten werden dann aus den EHT-Gleichungen

$$\sum_{\nu} (H_{\mu\nu} - E_i S_{\mu\nu}) c_{\nu}^i = 0 \quad , \quad \mu = 1, 2, \dots, N \quad (2.16)$$

durch Matrixdiagonalisierung bestimmt. Dabei bezeichnet

$$S_{\mu\nu} = \langle \chi_{\mu} | \chi_{\nu} \rangle \quad (2.17)$$

Ueberlappintegrale und die Matrixelemente des Hamilton-Operators werden durch

$$H_{\mu\nu} = -\frac{1}{2} K_{\mu\nu} (I_{\mu} + I_{\nu}) S_{\mu\nu} \quad , \quad \mu = \nu$$

$$H_{\mu\mu} = -I_{\mu} \quad (2.18)$$

approximiert, wobei I_{μ} empirische Atomionisierungsenergien und $K_{\mu\nu}$ empirische Konstanten der Grössenordnung eins sind. Die Ueberlappintegrale (Zweizentrenintegrale) sind nun empfindliche Funktionen der relativen Abstände der beteiligten Atome, und diese Abstände fluktuieren durch die thermische Bewegung. Hat man Gl.(2.16) für die Gleichgewichtskonfiguration gelöst, so kann man die Ueberlappintegrale entsprechend Gl.(2.13) nach den Verzerrungen ϵ_{ij} entwickeln und eine Störungsrechnung durchführen. Aehnlich wie beim Kristallfeldansatz zeigt es sich auch hier, dass mindestens eine Rechnung in zweiter Ordnung Störungstheorie notwendig ist, und dass in dieser Ordnung die Aenderung der HFWW proportional zu $\langle \epsilon^2 \rangle$ ist.

Zusammenfassend kann also festgestellt werden, dass die Form der Temperaturabhängigkeit, wie durch Gl.(2.11) beschrieben, vom zugrundeliegenden Prozess weitgehend unabhängig ist. Der Gültigkeitsbereich von Gl.(2.11) wird jedoch beschränkt durch die Verwendung der Entwicklung Gl.(2.13) (lange Wellen) sowie durch die Mittelung über ein Debye-Phononspektrum. Beide Annahmen

sollten für tiefe Temperaturen eine gute Näherung sein. Zudem ergeben Rechnungen ohne die Annahme langer Wellen und bei Berücksichtigung der optischen Phononen [21], [22] zwar viel kompliziertere Formeln als Gl.(2.11), doch unterscheiden sich bei geeigneter Parameterwahl die gerechneten Kurven nur sehr wenig.

Für theoretische Berechnungen der HFWW wird im allgemeinen ein starres Gitter angenommen. Im Rahmen des Debye-Modells lässt sich eine Aussage über den Einfluss der Nullpunktsschwingungen machen. Aus den Gleichungen (2.9), (2.10) und (2.11) folgt [23]

$$\Lambda_{sg} = \Lambda(T=0) \left(1 + \frac{1}{8} C \right), \quad (2.19)$$

wobei Λ_{sg} die HFWW für das starre Gitter und $\Lambda(T=0)$ die bei $T = 0$ K gemessene HFWW ist.

Der Vollständigkeit halber sei noch erwähnt, dass man auch die Annahme machen kann, dass nur eine Phononfrequenz ν zur Temperaturabhängigkeit der HFWW beiträgt (Einstein-Modell, optische Phononen). Unabhängig davon, ob man eine Entwicklung nach Verzerrungen ϵ_{ij} oder nach Auslenkungen u_i benutzt, erhält man eine Temperaturabhängigkeit, die durch die Bose-Einstein-Verteilung bestimmt ist [24],

$$\Lambda(T) = \Lambda(0) \left(1 - \tilde{C}' / (\exp(\tilde{O}'/T) - 1) \right) \quad (2.20)$$

mit $\tilde{O}' = h\nu/k_B$. Diese Gleichung wird manchmal in der Form [25]

$$\Lambda(T) = \Lambda(0) \left(1 - \tilde{C} (\coth(\tilde{O}/T) - 1) \right) \quad (2.21)$$

geschrieben, mit $\tilde{C} = \tilde{C}'/2$ und $\tilde{O} = \tilde{O}'/2$.

In der Literatur wurden auch lokale Schwingungen als Ursache für eine temperaturabhängige HFWW angenommen [26], [27]. Man nimmt in diesem Modell an, dass Myonium als Ganzes mehrere Oszillatorniveaus besetzt. Jedem Niveau ist eine Energie und eine HFWW zugeordnet und die gemessene HFWW ist ein thermischer Mittelwert. Damit keine Dämpfung des Signals entsteht, müssen schnelle Uebergänge zwischen den einzelnen Niveaus angenommen

werden. Beschränkt man sich auf den Grundzustand (0) und den ersten angeregten Zustand (1), so erhält man

$$A(T) = A(0) \left(1 - C'' / (\exp(\theta''/T) + 1) \right) , \quad (2.21)$$

wobei $C'' = (A(0) - A(1)) / A(0)$

$$\theta'' = (E(1) - E(0)) / k_B . \quad (2.22)$$

Es sei noch erwähnt, dass diese Formel auch anwendbar ist, wenn Myonium zwischen zwei verschiedenen Plätzen hin und her springt oder über zwei verschiedene Plätze gleicher Häufigkeit diffundiert.

2.2 Spin-Hamilton-Operatoren und zeitliche Entwicklung des Myonspins

Die beobachtbare Grösse bei einem μ SR-Experiment ist die zeitliche Entwicklung der Myonspinpolarisation. In diesem Kapitel wollen wir den Formalismus zu deren theoretischen Beschreibung für den Fall, dass Myonium gebildet wird, zusammenstellen. Relaxationsprozesse sollen jedoch ausgeklammert sein. Unter dieser Voraussetzung lässt sich ein Spin-Hamilton-Operator H benutzen, der lediglich den Myonspin- $\vec{I}$ und den Elektronspinoperator $\vec{S}$ enthält.

Myonium werde zur Zeit $t = 0$ gebildet. Da das eingefangene Elektron nicht polarisiert ist, liegt als Anfangszustand ein quantenmechanisches Gemisch vor. Es ist daher zweckmässig, den Dichteoperator ρ zu benutzen. Seine Bewegungsgleichung lautet:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] \quad (2.23)$$

Zur Lösung ist es bequem, als Basis die Lösungen der Eigenwertgleichung

$$H|\psi_\nu\rangle = E_\nu|\psi_\nu\rangle \quad (2.24)$$

zu benutzen. Mit den Definitionen

$$\rho_{\alpha\beta} = \langle\psi_\alpha|\rho|\psi_\beta\rangle \quad (2.25)$$

$$\omega_{\alpha\beta} = (E_\alpha - E_\beta)/\hbar \quad (2.26)$$

findet man

$$\rho_{\alpha\beta}(t) = \rho_{\alpha\beta}(0) e^{-i\omega_{\alpha\beta}t} \quad (2.27)$$

Der Anfangszustand des Dichteoperators ist gegeben durch [28]

$$\rho(0) = \frac{1}{4} (1 + 2 \vec{P} \cdot \vec{I}) \quad , \quad (2.28)$$

wobei $\vec{P}$ die Myonpolarisation für $t=0$ bezeichnet. Diese Gleichung wird gerechtfertigt durch

$$\text{Sp}(\rho(0)) = 1 \quad (2.29)$$

$$2 \operatorname{Sp}(\vec{I}_P(0)) = \vec{P} \quad , \quad (2.30)$$

wobei die Spur über den 4-dimensionalen Myoniumspinraum zu nehmen ist. Benutzt man noch

$$\operatorname{Sp}(I_i) = 0 \quad (2.31)$$

$$\operatorname{Sp}(I_i I_j) = \delta_{ij} \quad , \quad (2.32)$$

so erhält man als allgemeinen Ausdruck für die zeitabhängige Myonpolarisation

$$\vec{P}(t) = 2 \operatorname{Sp}(\rho(t) \vec{I}) = \sum_{\alpha, \beta} \langle \psi_\alpha | \vec{P} \cdot \vec{I} | \psi_\beta \rangle \langle \psi_\beta | \vec{I} | \psi_\alpha \rangle e^{-i\omega_{\alpha\beta} t} \quad . \quad (2.33)$$

Als nächstes berechnen wir damit $\vec{P}(t)$ für die Fälle, die für die Experimente in dieser Arbeit wichtig sind. Dazu muss die Eigenwertgleichung für H gelöst werden. Als Basis benutzen wir die Produkte der Eigenzustände von I_z und S_z :

$$\begin{aligned} |\chi_1\rangle &= |+\rangle_\mu |+\rangle_e \\ |\chi_2\rangle &= |-\rangle_\mu |-\rangle_e \\ |\chi_3\rangle &= |+\rangle_\mu |-\rangle_e \\ |\chi_4\rangle &= |-\rangle_\mu |+\rangle_e \quad . \end{aligned} \quad (2.34)$$

Mit der Entwicklung

$$|\psi\rangle = \sum_{i=1}^4 c_i |\chi_i\rangle \quad (2.35)$$

erhält man die Eigenwertgleichung in Matrixform

$$\sum_{i=1}^4 c_i \langle \chi_j | H | \chi_i \rangle = E c_j \quad , \quad j = 1, \dots, 4 \quad . \quad (2.36)$$

Wir betrachten zunächst Myonium mit anisotroper HFWW ohne äusseres Magnetfeld, d.h.

$$H = A_{11} I_x S_x + A_{22} I_y S_y + A_{33} I_z S_z \quad . \quad (2.37)$$

Diese Form gilt für Myonium in Quarz bei tiefen Temperaturen [29], und enthält als Spezialfälle das axialsymmetrische sogenannte anomale Myonium Mu^* in Diamant [7], Si [6] und Ge [5], sowie Myonium in Quarz bei höheren Temperaturen [30]

($A_{11} = A_{22} =: A_{\perp}$ und $A_{33} =: A_{\parallel}$) und des weiteren isotropes, normales Myonium Mu ($A_{11} = A_{22} = A_{33} =: A$).

Die Eigenwertgleichung zerfällt in zwei zweidimensionale Gleichungen und lässt sich daher leicht lösen. Das Resultat ist

$$E_{1,2} = \frac{1}{4} (A_{33} \pm (A_{11} - A_{22})) \quad (2.38)$$

$$E_{3,4} = \frac{1}{4} (-A_{33} \pm (A_{11} + A_{22}))$$

$$|\psi_{1,2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\chi_1\rangle \pm |\chi_2\rangle) \quad (2.39)$$

$$|\psi_{3,4}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\chi_3\rangle \pm |\chi_4\rangle) .$$

Bei den Experimenten war der Positronendetektor in Richtung der Anfangspolarisation $\vec{P}$ aufgestellt, und wir wollen daher nur die Komponente von $\vec{P}(t)$ in dieser Richtung aufschreiben:

$$P(t) = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^3 P_j^2 (\cos(\omega_j^+ t) + \cos(\omega_j^- t))$$

$$v_x^{\pm} = \frac{1}{2h} (A_{22} \pm A_{33})$$

$$v_y^{\pm} = \frac{1}{2h} (A_{33} \pm A_{11}) \quad (2.40)$$

$$v_z^{\pm} = \frac{1}{2h} (A_{22} \pm A_{11})$$

Dabei wurde die Normierung $p(0) = 1$ angenommen und die Notation $\omega = 2\pi\nu$ benutzt. Die P_j bezeichnen die Projektionen der Anfangspolarisation $\vec{P}$ entlang den Hauptachsen der HFWW.

Für den axialsymmetrischen Fall entarten die Niveaus 1 und 2,

$$\begin{aligned} E_1 &= E_2 = A_{\perp}/4 \\ E_{3,4} &= \frac{1}{4} (-A_{\perp} \pm 2A_{\parallel}) \end{aligned} \quad (2.41)$$

und wir erhalten nur noch drei von Null verschiedene Uebergangsfrequenzen. Dafür tritt ein zeitlich konstanter Anteil der Polarisation auf.

$$\begin{aligned} P(t) &= \frac{1}{2} \sin^2 \phi (\cos(\omega_1 t) + \cos(\omega_2 t)) + \\ &+ \frac{1}{2} \cos^2 \phi (1 + \cos(\omega_3 t)) \end{aligned} \quad (2.42)$$

$$\begin{aligned} v_1 &:= v_x^+ = v_y^+ = \frac{1}{2h} (A_{\perp} + A_{\parallel}) \\ v_2 &:= v_x^- = v_y^- = \frac{1}{2h} (A_{\perp} - A_{\parallel}) \\ v_3 &:= v_z^+ = \frac{1}{h} A_{\perp} \end{aligned} \quad (2.43)$$

Mit ϕ wurde der Winkel zwischen Anfangspolarisation und Symmetrieachse bezeichnet ($P_z = \cos \phi$).

Im isotropen Fall gibt es nur noch zwei verschiedene Energieniveaus (ein Triplett, ein Singulett)

$$\begin{aligned} E_1 &= E_2 = E_3 = A/4 \\ E_4 &= -\frac{3}{4} A \end{aligned} \quad (2.44)$$

und damit nur noch eine von Null verschiedene Uebergangsfrequenz $v_0 = A/h$. Die Polarisation ist gegeben durch

$$P(t) = \frac{1}{2} (1 + \cos(\omega_0 t)) . \quad (2.45)$$

Wir betrachten zum Abschluss dieses Kapitels noch den Fall der axialsymmetrischen HFWW mit äusserem Feld. Es ist zweckmässig, ein Koordinatensystem mit der z-Achse parallel zum

Magnetfeld $\vec{B}$ zu benutzen. Die Zeeman-Energien sind dann diagonal in der Basis $|\chi_j\rangle$ und der Hamilton-Operator erhält die Form

$$\begin{aligned} H = & (\Lambda_{\perp} \cos^2 \theta + \Lambda_{\parallel} \sin^2 \theta) I_x S_x + \Lambda_{\perp} I_y S_y + \\ & + (\Lambda_{\parallel} \cos^2 \theta + \Lambda_{\perp} \sin^2 \theta) I_z S_z + \\ & + (\Lambda_{\parallel} - \Lambda_{\perp}) \sin \theta \cos \theta (I_x S_z + I_z S_x) + \\ & + g_e \mu_B^e B S_z + g_{\mu} \mu_B^{\mu} B I_z , \end{aligned} \quad (2.46)$$

wobei θ der Winkel zwischen $\vec{B}$ und der Symmetrieachse ist. Die Eigenwertgleichung lässt sich analytisch nur dann auf einfache Weise lösen, wenn die Grösse ϵ

$$\epsilon := \frac{1}{4} \delta \cos \theta \sin \theta \quad , \quad \delta := \Lambda_{\parallel} - \Lambda_{\perp} \quad (2.47)$$

gleich Null ist. Die Eigenwerte bis zur ersten Ordnung in ϵ sind

$$E_{1,3} = \frac{1}{4} (\Lambda_{\perp} + \delta \cos^2 \theta) \pm \frac{1}{2} \left[(\Gamma_{+B})^2 + \frac{1}{4} \delta^2 \sin^4 \theta \right]^{1/2} \quad (2.48)$$

$$E_{2,4} = \frac{1}{4} (\Lambda_{\perp} + \delta \cos^2 \theta) \pm \frac{1}{2} \left[(\Gamma_{-B})^2 + \frac{1}{4} (2\Lambda_{\perp} + \delta \sin^2 \theta)^2 \right]^{1/2} ,$$

wobei

$$\Gamma_{\pm} := g_e \mu_B^e \pm g_{\mu} \mu_B^{\mu} \quad . \quad (2.49)$$

Das Ergebnis ist exakt, falls $\epsilon=0$, d.h. $\theta=0, \pi/2$ oder $\delta=0$. Die zeitabhängige Myonpolarisation wurde für $\theta=0$ von P.F. Meier [31] berechnet,

$$\begin{aligned} P(t) = & \frac{1}{2} \cos^2 \beta \left[\cos(\omega_{12} t) + \cos(\omega_{34} t) \right] + \\ & + \frac{1}{2} \sin^2 \beta \left[\cos(\omega_{23} t) + \cos(\omega_{14} t) \right] \end{aligned} \quad (2.50)$$

wobei $\cotan(2\beta) = \Gamma_{-B}/\Lambda_{\perp}$.

Wir interpretieren diese Gleichungen noch speziell für kleine Anisotropie $|\delta| \ll \Lambda_{\perp}$ und den Bereich mittlerer Felder,

a.h. $|\delta| \ll \Gamma_B \ll A_1$. Dann gilt $\nu_{12}, \nu_{34} \gtrsim A_1/h$ und $\nu_{12}, \nu_{23} \approx \Gamma_B/(2h)$. Die Beobachtung der beiden Frequenzen ν_{12} und ν_{23} wird üblicherweise als Zweifrequenzen-Methode bezeichnet [4]. Mangels genügender apparativer Zeitauflösung bleiben dabei die Frequenzen ν_{14} und ν_{34} dann unbeobachtet. Bildet man aus den beiden beobachtbaren Frequenzen die Summe und die Differenz,

$$\begin{aligned}\Sigma\nu &:= \nu_{12} + \nu_{23} = (E_1 - E_3)/h \\ \Delta\nu &:= \nu_{23} - \nu_{12} = (2E_2 - E_1 - E_3)/h\end{aligned}\quad (2.51)$$

so erhält man in erster Ordnung in ϵ

$$A_1 = \frac{h}{2} \frac{(\Sigma\nu + 2\nu_\mu)^2 - (\Delta\nu + \delta' \cos^2 \theta)^2}{\Delta\nu + \delta' (3 \cos^2 \theta - 1)/2}, \quad (2.52)$$

wobei $\delta' = \delta/h$ und

$$\nu_\mu = g_\mu \mu_B^\mu / h \quad (2.53)$$

ist die Larmor-Frequenz für freie Myonen. Falls nicht überhaupt $\delta \equiv 0$, kann in den bekannten Fällen δ leicht durch eine Messung ohne äusseres Feld bestimmt werden. Die rechte Seite von Gl.(2.52) enthält dann nur noch experimentell bekannte Grössen.

Nimmt man an, dass der myonische g-Faktor nicht wesentlich vom Vakuumwert abweicht, so erhalten wir innerhalb derselben Näherung auch den g-Faktor des Elektrons,

$$g_e = -\frac{m_e}{m_\mu} \left(\frac{\Sigma\nu}{\nu_\mu} + 1 \right) g_\mu \quad (2.54)$$

wobei $m_\mu/m_e = 206.769$ das Massenverhältnis von Myon und Elektron ist. Es sei noch erwähnt, dass die Gleichungen (2.52) und (2.54) exakt sind, falls $\theta=0$ oder $\delta=0$.

III. EXPERIMENTELLE METHODEN UND

APPARATUR

3.1 Effekte endlicher Zeitauflösung

Die Myoniumhyperfeinfrequenzen liegen im Bereich von 2 GHz (Si) bis 4.5 GHz (Quarz). Wir müssen daher untersuchen, welchen Einfluss eine endliche apparative Zeitauflösung auf die Form von hochfrequenten Signalen hat. Das Modulationsspektrum, das dem exponentiellen Myonzerfall überlagert ist, besteht im allgemeinen aus einer Summe von Termen der Form

$$f(t) = a e^{-\lambda t} \cos(\omega t) \quad , \quad t \geq 0 \quad , \quad (3.1)$$

wobei eine exponentielle Dämpfungsfunktion angenommen wurde. Mit g sei die normierte Auflösungsfunktion bezeichnet, d.h. $g(t-t')$ soll als Funktion von t' die Verteilung beschreiben, die man erhält, wenn durch zwei Ereignisse mit konstantem Zeitabstand t die Uhr wiederholt gestartet bzw. gestoppt wird. Dass g nur von der Differenz $t-t'$ abhängen soll, bedeutet, dass die Form der Auflösungsfunktion unabhängig von t sein soll. Das gemessene Signal ist dann die Faltung von g mit f .

$$f_m(t) = \int g(t-t') f(t') dt' \quad (3.2)$$

Für realistische Fälle ist g nur innerhalb eines kleinen Intervalls Δt merklich von Null verschieden. Für Zeiten t viel größer als Δt folgt dann

$$\begin{aligned} f_m(t) &= a \operatorname{Re} \exp(i\omega - \lambda)t \int g(t') \exp[-(i\omega - \lambda)t'] dt' \\ &= a \operatorname{Re} c \exp(-\lambda t + i\omega t) \quad . \end{aligned} \quad (3.3)$$

Die Konstante c ($|c| \leq 1$) beschreibt die Reduktion der gemessenen Signalamplitude und, falls g nicht eine gerade Funktion ihres Arguments ist, eine Phasenverschiebung. Es ist jedoch wichtig festzustellen, dass die Form und im besonderen die Frequenz des gemessenen Signals unabhängig von der Form von g ist. Nimmt man für g eine Gauss-Funktion mit $\Delta t = \text{FWHM}$ (= Full Width

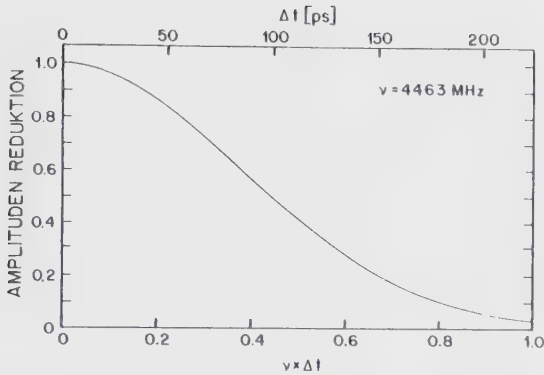


Abb. 3.1: Reduktionsfaktor für μ SR-Amplituden nach Gl.(3.4).

at Half Maximum), so lässt sich das Integral in Gl.(3.3) auswerten und man erhält (mit $\nu = \omega/2\pi$ und $\lambda = 0$) :

$$c = a_m/a = \exp\left[-(\pi\nu\Delta t)^2 / (4 \ln 2)\right] \quad (3.4)$$

In Abb. 3.1 ist diese Gleichung als Funktion von $\Delta t\nu$ und als Funktion von Δt für die Hyperfeinfrequenz von Myonium in Vakuum ($\nu = 4463$ MHz) aufgetragen. Um also noch ein "vernünftiges" Signal zu erhalten, sollte die Breite Δt der Auflösungsfunktion wesentlich kleiner als eine Periode $T = 1/\nu$ sein.

3.2 Detektoren

Nach den vorhergehenden Ausführungen ist es klar, dass zur Beobachtung der Myoniumhyperfeinfrequenzen eine apparative Zeitauflösung wesentlich kleiner als 200 ps FWHM notwendig ist. Dies ist möglich mit Detektoren, die aus Plastiksziintillatoren und Photomultipliern aufgebaut sind, sowie durch die Verwendung von sogenannten "constant fraction" Diskriminatoren zur Formung der Ausgangspulse der Photomultiplier. Ein schnelles Teilchen verliert im Szintillator Energie und erzeugt einen Lichtpuls. Das Licht fällt auf die Photokathode, löst dort Elektronen aus, die dann durch Sekundärelektronenvervielfachung verstärkt

werden. Dabei handelt es sich jeweils um statistische Prozesse. Wichtig für eine gute Zeitauflösung ist also, dass viele Lichtquanten innerhalb eines kurzen Zeitintervalls erzeugt werden und auf die Photokathode gelangen. Wichtiger noch als eine kurze Pulsbreite ist eine kurze Pulsanstiegszeit. Im Photomultiplier sollten die Laufzeitdifferenzen der Elektronen von der Photokathode zur Anode klein sein. Die Pulsanstiegszeit sollte während der Elektronenvervielfachung klein bleiben und die Verstärkung sollte einheitlich sein. Einen sehr ausführlichen Uebersichtsartikel über diese Art von Detektoren findet man in Ref. [32]. Speziell mit der Funktionsweise und den Eigenschaften von Plastiksziintillatoren befasst sich ein Artikel von Brooks [32a].

Als Szintillator wurde der Typ NE 111 (Nuclear Enterprises, G.B.) und als Photomultiplier die Philips Röhre XP 2020 gewählt. Zur Hochspannungsversorgung der Photomultiplier wurden am SIN hergestellte Spannungsteiler benutzt. Abb. 3.2 zeigt zwei Konstruktionen für den zeitbestimmenden Myondetektor. Die Teilchen

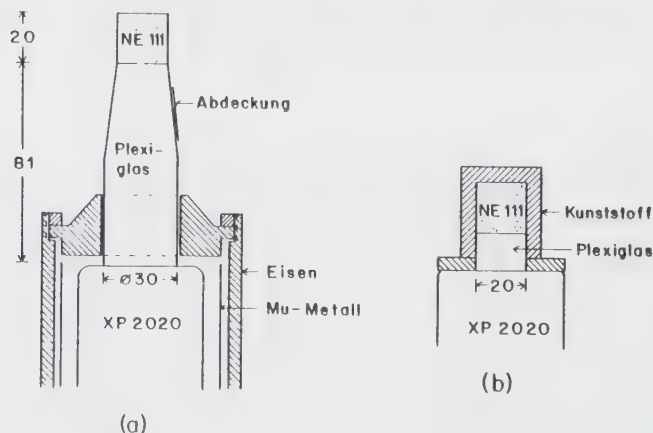


Abb. 3.2: Zwei zeitbestimmende Myondetektoren. Masse in mm.

passieren den Szintillator (Dimension $20 \times 20 \times 10 \text{ mm}^3$) senkrecht zur Papierebene. Bei (a) wird ein 81 mm langes Plexiglasstück als Lichtleiter benutzt. Von der Photokathode wird ein Fleck mit 30 mm Durchmesser beleuchtet. Die Röhre wird durch ein massives Eisenrohr und durch ein Mumetallrohr gegen Magnetfelder abgeschirmt. Die Abdeckung von Lichtleiter und Szintillator gegen äusseres Licht besteht aus einer Al-Folie und schwarzem Klebeband. Bei der Konstruktion (b) wurde nur noch ein kurzes Stück Lichtleiter benutzt und die beleuchtete Fläche der Photokathode auf $10 \times 20 \text{ mm}^2$ verkleinert. Aus geometrischen Gründen wurde auf eine Magnetfeldabschirmung verzichtet. Es zeigte sich, dass dadurch für Felder in der Grösse des Erdfeldes noch keine Probleme entstehen. Mit (b) wurden etwas bessere Ergebnisse erzielt als mit (a). Dies hat zwei Gründe: Einmal sind die Lichtverluste bei (b) vermutlich etwas kleiner, zum anderen werden

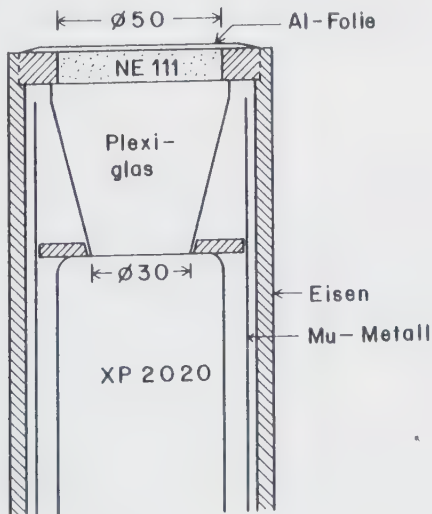


Abb. 3.3: Ein zeitbestimmender Positronendetektor. Masse in mm.

die Laufzeitdifferenzen im Photomultiplier kleiner, wenn eine kleinere Fläche der Photokathode beleuchtet wird. Die Messungen an Quarz ($\nu = 4.5$ GHz, siehe Kap.4.4) wurden mit Detektor (b) durchgeführt.

Einen zeitbestimmenden Detektor für die Zerfallspositronen zeigt Abb. 3.3. Der Szintillator ist eine 10 mm dicke Scheibe mit 50 mm Durchmesser. Das Licht wird mit einem 50 mm langen, konischen Plexiglaszylinder auf die Photokathode geleitet, von der ein Fleck mit 30 mm Durchmesser beleuchtet wird. Mit diesem Detektor wurden die Messungen an Si und Ge durchgeführt ($\nu = 2.0$ GHz bzw. 2.36 GHz, siehe Kap.4.1). Zusammen mit dem Myondektor Abb. 3.2(a) wurde dabei eine Zeitauflösung von ca. 230-250 ps FWHM erreicht. Dies genügt offenbar nicht zur Beobachtung von 4.5 GHz. Für die Messungen an Quarz wurde daher eine 10 mm dicke Szintillatorscheibe mit 20 mm Durchmesser direkt auf den Photomultiplier geklebt. Damit wurde eine bedeutende Verbesserung der Zeitauflösung gegenüber dem Detektor nach Abb. 3.3 erreicht, allerdings auf Kosten der Zählrate.

3.3 Detektoranordnung

Um eine Zeitauflösung im Bereich von 100-200 ps zu erreichen, darf man die endliche Geschwindigkeit von Teilchen und Licht nicht mehr vernachlässigen. Insbesondere hat man darauf zu achten, dass Laufzeitunterschiede durch verschiedene Wege klein bleiben. Dies bedingt kleine Detektoren und allgemein einen kompakten Aufbau. Die Anordnung der Detektoren ist in Abb. 3.4 dargestellt. Der Myonstrahl wird durch drei Bleikollimatoren (Pb) auf einen Durchmesser von 12 mm kollimiert und dann in der Probe gestoppt. Polyäthylen (CH_2) dient als Moderator. Schwarze Balken symbolisieren Szintillatoren. Die zeitbestimmenden Detektoren M_t und E_t für Myonen bzw. Positronen sind diejenigen, die beim Experiment mit Quarz (Kap. 4.4) benutzt wurden. Die grossflächigen Szintillatoren (NE 102A) B_1 , B_2 , M und E (Dicke 5 mm) sind über ca. 30 cm lange Lichtleiter mit

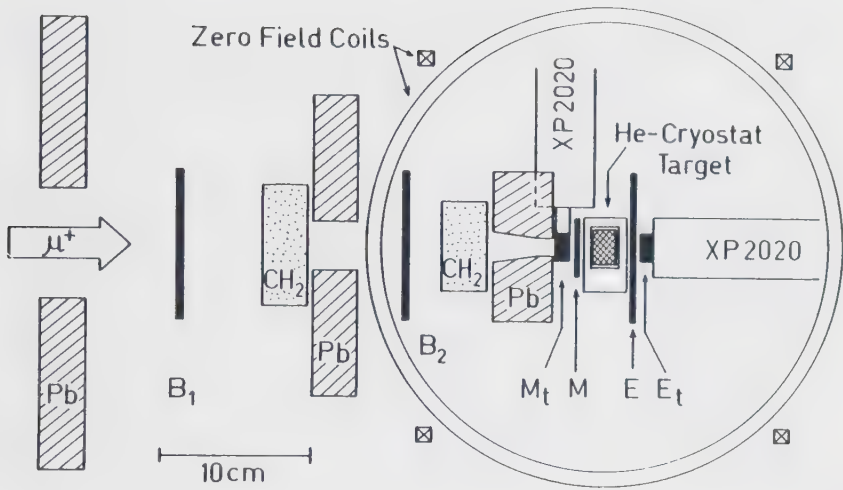


Abb. 3.4: Schematische Darstellung der Detektoranordnung. Gezeigt sind die Szintillatoren (schwarz), die Bleikollimatoren (Pb), der Moderator (CH_2), der Kryostat mit Probe und die Photomultiplier (XP 2020) der zeitbestimmenden Detektoren.

den Photomultipliern verbunden. Diese Detektoren liefern Signale, die lediglich zur logischen Unterscheidung verschiedener Ereignisse wie z.B. einfallendes Myon, gestopptes Myon oder Zerfallspositron dienen. Das Erdfeld kann mit drei Paaren von aufeinander senkrecht stehenden Spulen kompensiert werden.

3.4 Elektronik

Ein Schema vom elektronischen Teil der Apparatur ist in Abb.3.5 und Abb. 3.6 gezeigt. Bezeichnung und Reihenfolge der Detektoren sind gleich wie in Abb. 3.4.

Wir besprechen zunächst die logischen Funktionen, wie sie in ihrer natürlichen Reihenfolge ablaufen. Die Anodenpulse von den Photomultipliern werden mit Diskriminatoren zu Einheitspulsen mit einer typischen Länge von 5 - 15 ns geformt. Damit werden mit schnellen Koinzidenzeinheiten logische Verknüpfungen gebildet. Mit der Kombination $INC = B_1 \cdot B_2 \cdot M = B \cdot M$ wird ein einfallendes Myon angezeigt und der Ausgang B vom Pile-up-Gate gesetzt. Ein in der Probe gestopptes Myon erzeugt das Signal $IST = INC \cdot \bar{E}$. Liegt Koinzidenz mit dem zeitbestimmenden Signal von M_t vor, entsteht ein Start-Signal, mit dem das Data-Gate gesetzt und der TAC (Time to Amplitude Converter) gestartet wird. Damit beginnt ein Messzyklus, und es wird gewartet, bis das Myon in der Probe zerfällt oder der Messprozess am Ende vom Data-Gate abgebrochen wird. Wird das Zerfallspositron in Richtung der Detektoren E und E_t emittiert, so entsteht das Signal $EF = E \cdot \overline{(M+B)}$. Der zeitbestimmende Puls von E_t stoppt den TAC, falls Koinzidenz mit EF vorliegt.

Unkorrelierte Ereignisse werden folgendermassen unterdrückt. Das Signal $EL = (M+E) \cdot \bar{B}$ wird als Zerfallspositron interpretiert. Der erste EL-Puls setzt das Flip-Flop FF1 ("Logic-Box", Abb. 3.6). Folgt innerhalb des Data-Gates noch ein zweiter EL-Puls, so wird auch FF2 gesetzt. Wird innerhalb des Pile-up-Gates ein weiteres Myon detektiert (Signal INC), so wird das Signal P gesetzt. Bei zwei Myonen oder zwei Positronen ist eine eindeutige Zuordnung nicht mehr möglich, und solche Ereignisse müssen daher verworfen werden. Am Ende vom Data-Gate wird mit One-Shot OS1 ein kurzer Puls erzeugt (EDG) und damit der Zustand von FF2 und P überprüft. Ist wenigstens einer der beiden logisch "eins", und hat es auch einen Stop-Puls gegeben (FF3), so wird ein Reset-Signal erzeugt, mit dem der TAC zurückgesetzt

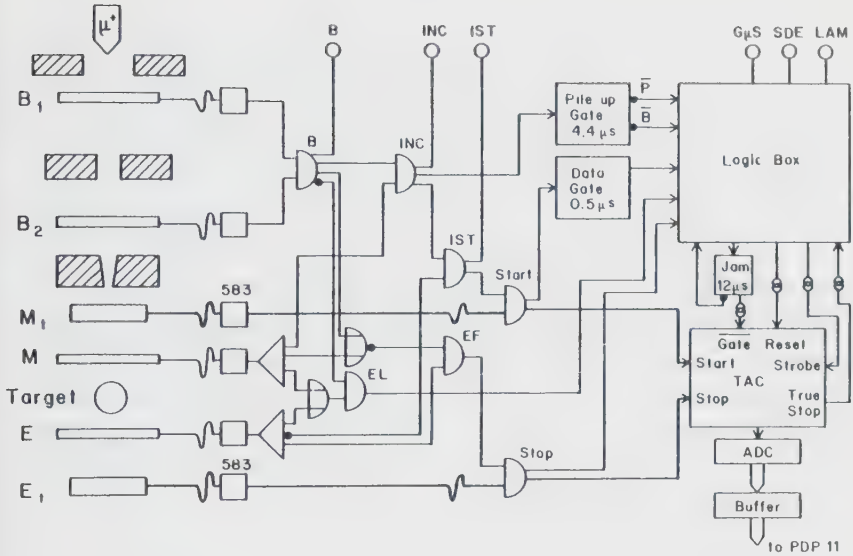


Abb. 3.5: Schema des Aufbaus der Elektronik. $\square$ Verzögerungskabel, $\square$ Diskriminator, $\triangle$ Fan-Out, D Koinzidenz, $\circ$ Scaler, $\otimes$ Level-Adapter.

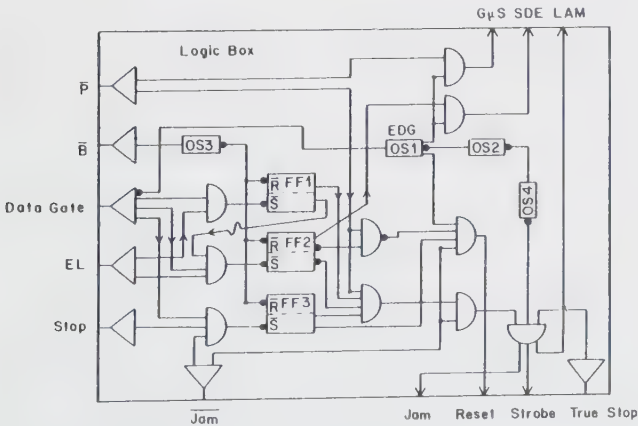


Abb. 3.6: Logic-Box.

wird. Ohne Stop-Puls ist dies nicht nötig, da in diesem Fall der TAC sich am Ende seines Bereichs automatisch zurücksetzt. Ist dagegen während der Länge des Data-Gates genau ein Positron detektiert worden, ist der TAC tatsächlich gestoppt worden und ist auch kein zweites Myon festgestellt worden, so wird ein Strobe-Signal erzeugt, mit dem der TAC veranlasst wird, seine analoge Zeitinformation an den ADC (Analog to Digital Converter) weiterzugeben. Gleichzeitig wird ein 12 μ s langes Totzeitsignal (JAM) erzeugt, das den Starteingang des TAC sperrt und damit sicherstellt, dass die nachfolgende Datenverarbeitung nicht durch neue Ereignisse gestört wird. Am Ende des Pile-up-Gates (B) wird mit One-Shot OS3 ein kurzer Puls erzeugt, der alle Flip-Flops zurücksetzt. Damit ist ein Messzyklus abgeschlossen.

Die genauen Zeitpunkte für einen Myonstopp in der Probe und der Emission eines Positrons werden durch die Signale der Detektoren M_t und E_t bestimmt. Der Weg dieser zeitbestimmenden Signale ist in Abb. 3.5 durch dicke Linien hervorgehoben. Als Verbindung zwischen Myonareal und dem Elektronikaufbau dienen 10 m lange Kabel vom Typ RG 218/U mit zweifacher Abschirmung und geringem Verlust. Die Anodenpulse werden mit sogenannten Differential-Constant-Fraction Diskriminatoren (Typ 583 von Ortec) zu Einheitspulsen geformt. Diese passieren dann je eine schnelle Koinzidenzeinheit (in Abb. 3.5 mit "Start", bzw. "Stop" bezeichnet) und gelangen so in den Start- bzw. Stoppeingang des TAC. Länge und Ankunftszeiten der Pulse an den Eingängen der Koinzidenzeinheiten "Start" und "Stop" sind so eingestellt, dass die erste Flanke der zeitbestimmenden Pulse die Einheiten durchschaltet. Es wurde jedoch festgestellt, dass dabei noch ein merklicher Zeitfehler von ca. 20 - 40 ps entsteht, wenn die entsprechenden Logiksignale eine zeitliche Streuung von mehreren ns haben. Durch die Verwendung von Constant-Fraction Diskriminatoren auch für die Signale von B_1, B_2, M und E konnte dieser Effekt beseitigt werden. Die Anpassung der 583-Diskriminatoren an die Form der Anodenpulse für eine optimale Zeitauflösung

wurde mit einer ^{60}Co -Quelle (zwei praktisch simultane γ -Quanten mit je ca. 1.2 MeV) durchgeführt. Die beste dabei erzielte Zeitauflösung war 150 ps FWHM. Zum Vergleich, nach Ref.[32] steht der letzte publizierte Rekord für ähnliche Bedingungen bei 130 ps. Längere Abgleicharbeiten mit Strahl waren somit nicht notwendig.

Der digitale Teil der Elektronik besteht neben dem ADC mit 13 Bit Auflösung noch aus einem Zwischenspeicher (Buffer), einem Bildschirmgerät zur grafischen Darstellung der Spektren und einen Camac-Anschluss an einen PDP 11 - Computer. Der Zwischenspeicher enthält zwei Seiten mit je 256 Worten. Während eine Seite vom ADC mit Daten gefüllt wird, kann die andere Sei-

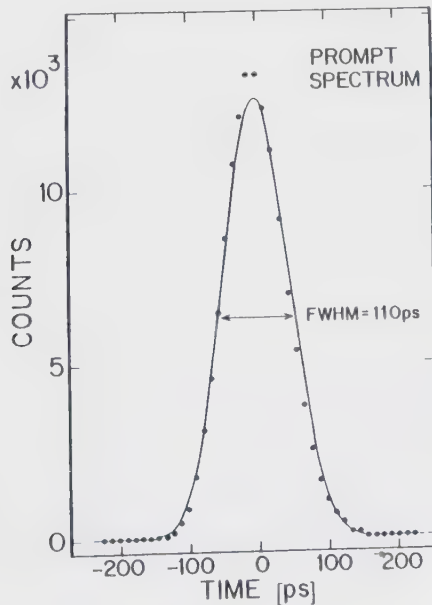


Abb. 3.7: Zeitauflösungsspektrum, aufgenommen mit Myonen, die alle Detektoren passieren. Zeit pro Kanal 11.4 ps. Angepasste Gauss-Kurve mit FWHM = 110 ps.

te vom Computer ausgelesen werden. Die Daten werden von einem Messprogramm [33] im Speicher des Computers zu einem Spektrum mit 8192 Kanälen akkumuliert. Das Programm steuert auch das Camac-System und erlaubt einfache Datenmanipulationen während der Messung wie z.B. Fourier-Transformation des Spektrums. Am Ende einer Messung werden die Daten zur späteren Auswertung auf Magnetband geschrieben.

Die wichtigste Kenngrösse der Apparatur ist für unsere Zwecke die Zeitauflösung. Abb. 3.7 zeigt ein Spektrum, das mit Myonen, die alle Detektoren passierten, aufgenommen wurde. Moderator und Probe waren nicht im Strahlweg. Die eingezeichnete Kurve entspricht der besten Anpassung an eine Gauss-Funktion mit einer Breite von 110 ps FWHM.

3.5 Kryostat

Damit eine kompakte Anordnung der Detektoren möglich ist und auch kleine Szintillatoren (E_t) noch einen nennenswerten Raumwinkel bezüglich der Probe aufspannen, muss der Kryostat eine möglichst kleine Abmessung in Strahlrichtung haben. Der Querschnitt ist in Abb. 3.4 angedeutet. Im wesentlichen besteht der Kryostat aus zwei ineinandergestellten, rechteckigen und ca. 60 cm langen Rohren. Die Aussenabmessungen betragen $30 \times 60 \text{ mm}^2$. Das innere Rohr dient als Probenraum und hat eine lichte Weite von $28 \times 17 \text{ mm}^2$. Flüssiges Helium wird in einem Sinterkörper verdampft und strömt dann als Gas durch den Probenraum. Eine Heizwicklung um den Sinterkörper dient der Temperaturregulierung. Kupfer-Konstantan Thermoelemente sowie Kohle- und Platinwiderstände wurden zur Messung und Regelung der Probentemperatur benutzt.

3.6 Hochdruckanlage

μ SR-Experimente bei hohem Druck sind nicht ganz einfach, weil man dabei die Myonen leicht im dickwandigen Druckgefäß und nicht in der Probe stoppt. Bei dem hier beschriebenen Experiment handelt es sich deshalb auch erst um den zweiten Versuch dieser Art [34].

Als Material für die Druckzelle wurde eine Titanlegierung mit 6% Al und 4% V gewählt (Luftfahrt-WNr. 37164). Die spezifizierte 0.2% Zugfestigkeit beträgt 8300 kp/cm^2 , d.h. bei diesem Zug ist eine bleibende Deformation von 0.2% zu erwarten. Dieser Wert ist vergleichbar mit den besten Stahlsorten; Titan hat jedoch nur gut die Hälfte der Dichte von Stahl und ist zudem sicher nicht magnetisch.

Um den maximal möglichen Innendruck $P_{\max}$ für eine rohrförmige Zelle zu bestimmen, kann man die sogenannte Kesselgleichung

$$P_{\max} = 2 \frac{s}{d} \sigma_{\max} \quad (3.5)$$

benutzen, die man aus einer einfachen Gleichgewichtsüberlegung

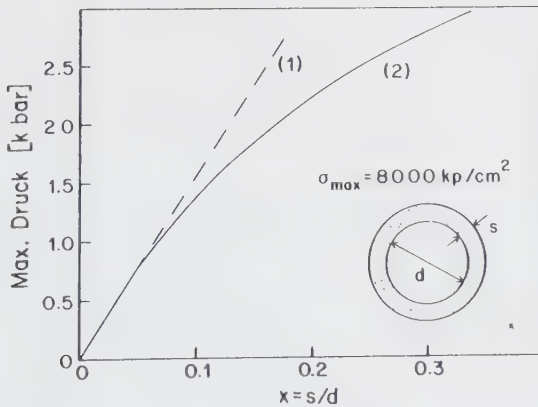


Abb. 3.8: Maximal zulässiger Innendruck für ein Rohr. Gestrichelte Gerade (1) nach Gl.(3.5), Kurve (2) nach Gl.(3.6).

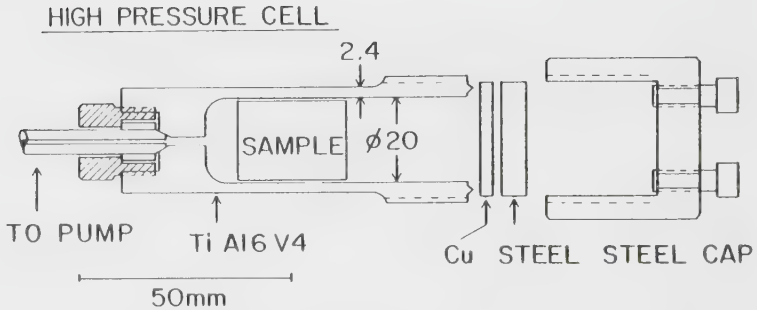


Abb. 3.9: Aufbau der Druckzelle. Masse in mm.

erhält. Dabei bezeichnet s/d das Verhältnis von Wandstärke s zu Innendurchmesser d und $\sigma_{\max}$ die maximal zulässige Zugspannung. Für dickwandige Rohre benutzt man besser die Gleichung [35]

$$P_{\max} = \frac{4}{\sqrt{3}} \times \frac{1+x}{(1+2x)^2} \sigma_{\max}, \quad x = s/d. \quad (3.6)$$

Abb. 3.8 zeigt $P_{\max}$ als Funktion von $x = s/d$ nach den beiden Gleichungen für $\sigma_{\max} = 8000 \text{ kp/cm}^2$.

Die Konstruktion der Zelle ist in Abb. 3.9 dargestellt. Der Probenraum hat einen Innendurchmesser von 20 mm und eine Wandstärke von 2.4 mm. Mit Gl.(3.6) ergibt dies einen maximal zulässigen Druck von 1600 bar. Der Verschluss des Probenraums besteht aus einer Edelstahlkappe, die auf das Ti-Rohr aufgeschraubt wird und einer Cu-Scheibe als Dichtung. Mit sechs ringförmig angeordneten Schrauben wird die Cu-Scheibe auf eine scharfe Schneide gepresst, wobei eine 6 mm dicke Edelstahlscheibe zur Kraftübertragung dient. Der Anschluss der Druckleitung von der Pumpe enthält kein spezielles Dichtmaterial, die Dichtwirkung entsteht durch das Ineinanderpressen zweier Konen. Der Druck wurde mit einer Handpumpe erzeugt, die jedoch von einem Motor angetrieben wurde, um eine Fernsteuerung zu ermöglichen. Die Druckübertragung erfolgte mit Öl. Das zur Druckmessung verwendete Manometer hat eine Genauigkeit, die besser

als ± 30 bar ist. Die Zelle wurde wiederholt bis 1500 bar belastet. Dabei blieben permanente Deformationen kleiner als einige 1/100 mm für den Aussendurchmesser.

Für das Experiment war eine leichte Kühlung auf ca. 0°C und eine konstante Temperatur der Probe notwendig. Zu diesem Zweck wurde auf die Zelle ein Cu-Rohr mit fünf Windungen geklebt (mit GE 7031), durch das kaltes N_2 -Gas geleitet wurde. Die Gaszuleitung hatte eine Heizwicklung für die Temperaturregulierung. Zur Temperaturmessung wurden an mehreren Stellen Kupfer-Konstantan-Thermoelemente und Platinwiderstände auf die Zelle geklebt. Zelle, Kühlung und Temperaturfühler wurden zur thermischen Isolation in einen Styroporblock eingegossen.

3.7 Datenanalyse

Wie bereits in der Einleitung ausgeführt, besteht ein μSR -Spektrum aus einer exponentiellen Zerfallskurve, der gedämpfte, sinusförmige Oszillationen (die "Signale") überlagert sind. Letztere sind der zeitabhängigen Myonpolarisation proportional. Die allgemeine Form eines Spektrums ist daher:

$$N(t) = N_0 e^{-t/\tau_\mu} (1 + X(t)) + B \quad (3.7)$$

$$X(t) = \sum_{j=1}^n a_j R_j(t) \cos(2\pi \nu_j t + \phi_j) \quad (3.8)$$

N_0 ist eine Normierungskonstante und B ist ein zeitunabhängiger Untergrund. Die a_j , ν_j und ϕ_j sind Amplituden, Frequenzen und Anfangsphasen der n verschiedenen Beiträge zur Myonpolarisation. Für die Dämpfungsfunktionen R_j wurde die Form

$$R_j(t) = e^{-\lambda_j t} \quad (3.9)$$

angenommen. Ziel der Spektrenanalyse ist die Bestimmung der in Gl.(3.7) und (3.8) auftretenden Parameter und ihrer statistischen Fehler.

Für eine Vorauswertung wurde zunächst das Modulationsspektrum

$x(t)$ gemäss

$$x(t) = \left[(N(t) - B) e^{t/\tau} - N_0 \right] / N_0 \quad (3.10)$$

gebildet und unter der Annahme einer linearen Zeitskala t_k mit einer diskreten Fourier-Transformation

$$F_\ell = \frac{2}{N} \sum_{k=0}^{N-1} x(t_k) e^{2\pi i k \ell / N} \quad (3.11)$$

ein Frequenzspektrum $|F_\ell|^2$ berechnet. Daraus wurden die Zahl n der vorhandenen Signale und Näherungswerte für die Frequenzen ν_j und die Amplituden a_j bestimmt. Zur Beurteilung, ob eine Linie im Frequenzspektrum einem statistisch signifikanten Signal entspricht, wurde eine "confidence level" berechnet [36]. Die in dieser Arbeit gezeigten Frequenzspektren sind so normiert, dass für ein ungedämpftes Signal ($\lambda_j = 0$) das Maximum einer Linie gleich a_j^2 ist.

Durch die Verwendung von TAC und ADC für die Zeitmessung enthält die Zeitskala eine globale Nichtlinearität von ca. 1 ‰, die für die Endauswertung berücksichtigt werden musste. Während den Experimenten wurden mit einem 100 MHz - Quarzkalibrator (Genauigkeit ~ 10 ppm) Eichspektren aufgenommen, die aus Linien mit konstantem Zeitabstand $\Delta = 10$ ns bestehen. Als Zentrum einer Linie m wurde der Mittelwert

$$\bar{k}_m = \sum_k k N_k / \sum_k N_k \quad (3.12)$$

genommen, wobei die beiden Summen über die Breite der Linie m laufen. Dann ist die Zeit t für den mittleren Kanal $\bar{k}_m$ gegeben durch

$$t(\bar{k}_m) = \Delta \cdot (m - m_0) \quad , \quad (3.13)$$

wobei die Konstante m_0 aus einem prompten Spektrum wie es Abb. 3.7 zeigt, bestimmt wird. Für die Funktion $t(k)$, die die Zeit t für jeden Kanal k angibt, wurden zwei Möglichkeiten erprobt. Die erste Methode ist eine stückweise, lineare Interpolation

zwischen den mittleren Kanälen $\bar{k}_m$. Dabei ist offensichtlich keine a priori Kenntnis von $t(k)$ notwendig. Die zweite Methode ist eine globale Interpolation durch ein Polynom vom Grade g

$$t(k) = \sum_{i=0}^g \delta_i (k - k_0)^i, \quad (3.14)$$

dessen Koeffizienten durch Minimalisierung von

$$\chi^2 = \sum_m \left[\Delta(m - m_0) - \sum_{i=0}^g \delta_i (\bar{k}_m - k_0)^i \right]^2 \quad (3.15)$$

bestimmt wurden. k_0 ist der Kanalindex, für den $t=0$ ist. Es zeigte sich, dass Polynome mit $g=2$ oder $g=3$ bereits eine gute Anpassung ergeben.

Zur Endauswertung der Spektren wurden zwei Verfahren angewendet. Beim Ersten, das im Zeitraum abläuft, wurde nach der üblichen Methode der kleinsten Quadrate durch Minimalisierung von

$$\chi^2 = \sum_k \left[N_k - N(t(k)) \right]^2 / N_k \quad (3.16)$$

die Funktion Gl.(3.7,8) an die gemessenen Zeitspektren mit Kanalinhalt N_k angepasst. Wie oben beschrieben, wurde dabei eine nichtlineare Zeitskala $t(k)$ benutzt. Da die Spektren aus ca. 7000 Kanälen bestehen und oft mehrere Frequenzkomponenten enthalten (z.B. für Si bis $n=5$), ist für dieses Verfahren ein grosser Aufwand an Computerzeit notwendig. Zudem ist gerade für diesen Fall, d.h. mehrere schwache Signale bei einer grossen Zahl von Datenpunkten, der χ^2 -Test nicht sehr empfindlich auf eine schlechte Anpassung der physikalisch interessanten Parameter.

Es wurde daher noch ein weiteres Verfahren verwendet, das auf einer χ^2 -Anpassung im Fourier-Raum basiert. Die Nichtlinearität der Zeitskala wurde dabei ebenfalls berücksichtigt. Mit Hilfe der Funktion $t(k)$ wurden die Zeitspektren so "umgepackt", dass

neue Zeitspektren mit linearer Zeitskala und gleichem mittleren zeitlichen Kanalabstand entstanden. Diese zeitlinearen Spektren wurden dann nach Gl.(3.11) in komplexe Fourier-Spektren transformiert. Als Anpassungsfunktion $F(v_\ell)$ wurde die mit Gl.(3.11) Fourier-Transformierte von Gl.(3.8) benutzt. Diese Transformation lässt sich analytisch exakt durchführen. Minimalisiert wurde dann

$$\chi^2 = \frac{1}{N} \sum_{\ell} |F_{\ell} - F(v_{\ell})|^2 \quad (3.17)$$

Die Gewichte sind unabhängig von ℓ und für $B \ll N_0$, $a_j \ll 1$ gegeben durch

$$w_{\ell} = \frac{4}{N_0 N} (e^{T/l_{\mu}} - 1) \frac{l_{\mu}}{T} \quad (3.18)$$

T ist die zeitliche Länge des transformierten Spektrums.

Im Zeitspektrum ist die physikalisch interessante Information über das ganze Spektrum verteilt, während sie im Fourier-Spektrum auf relativ wenige Kanäle konzentriert ist, so dass man in Gl.(3.17) in der Regel auch nur wenige Kanäle berücksichtigen braucht und der Rechenaufwand daher entsprechend geringer ist. Zudem können bei hinreichend grossem Frequenzabstand Linien einzeln angepasst werden.

Vergleiche zeigten, dass die beiden Methoden praktisch identische Ergebnisse sowohl für die Parameterwerte als auch für ihre statistischen Fehler liefern. Je nach Zweckmässigkeit wurde daher eine der beiden Methoden zur Datenanalyse benutzt.

IV. EXPERIMENTE UND ERGEBNISSE

4.1 Mu in Ge und Si, Temperaturabhängigkeit

Normales Myonium Mu in Ge und Si wurde mit der direkten Methode in dem Temperaturbereich untersucht, in dem auch mit der üblichen Zweifrequenzen-Methode Signale von Mu beobachtbar sind. Als Proben wurden Einkristalle von höchster kommerziell erhältlichen Reinheit verwendet. Die Konzentration der elektrisch aktiven Verunreinigungen betrug nach Spezifikation ca. $10^{10}/\text{cm}^3$ für den Ge-Kristall und ca. $5 \times 10^{11}/\text{cm}^3$ für den Si-Kristall.

Als zeitbestimmende Detektoren wurden für diese Messungen die in Abb. 3.2a und Abb. 3.3 skizzierten Typen benutzt. Die zeitliche Länge der aufgenommenen Spektren war ca. 340 ns bei 7500 nutzbaren Kanälen (45 ps pro Kanal). Die Rate der akkumulierten

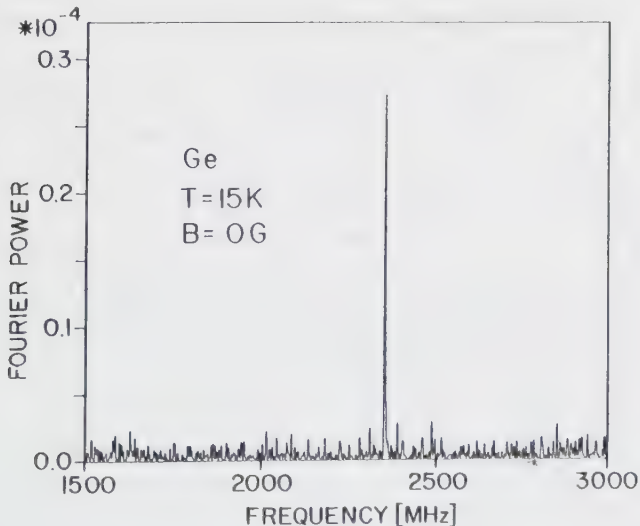


Abb. 4.1: Frequenzspektrum nach einer Messung an Ge bei 15 K.
Die Linie bei 2360 MHz entspricht dem direkten
Uebergang von Mu.

Ereignisse betrug ca. 500/s bei einer Myonstopprate von 35000/s. Typisch wurden etwa 4 h Messzeit für ein Spektrum aufgewendet. Abb. 4.1 zeigt das Frequenzspektrum einer Messung an Ge mit einer Linie bei 2360 MHz, die der erwarteten Triplet - Singulett Uebergangsfrequenz ν_0 entspricht.

Zur Bestimmung der apparativen Zeitauflösung wurde bei 15 Gauss die Amplitude der Triplet-Uebergangsfrequenz $\nu_{12} \approx \nu_{23} \ll \nu_0$ gemessen. Das Feld wurde mit einem Paar der "Nullfeld"-Spulen ohne Aenderung der Geometrie erzeugt. Durch Vergleich des experimentellen mit dem nach Gl.(2.50) theoretisch berechneten Amplitudenverhältnis wurde mit Gl.(3.4) die Zeitauflösung zu 230 - 250 ps FWHM bestimmt. Wie spätere Messungen zeigten, stammt der Hauptbeitrag zu diesem Wert vom mit 5 cm Durchmesser relativ grossen Positronendetektor.

Für die eigentlichen Messungen von ν_0 wurde das Erdfeld auf einen Wert kleiner als 0.05 Gauss kompensiert. Das Restfeld führt theoretisch zu einer Aufspaltung des Singulett - Triplet Uebergangs. Der Linienschwerpunkt erfährt dabei jedoch keine systematische Verschiebung. Innerhalb der beschränkten Spektrenlänge ist lediglich eine kleine zusätzliche Dämpfung von maximal $0.3 \mu s^{-1}$ möglich.

Die gemessenen Hyperfeinfrequenzen ν_0 sind in Abb. 4.2 für Ge und in Abb. 4.3 für Si als Funktion der Temperatur dargestellt. Die Ge-Daten lassen sich gut durch das Debye-Modell Gl.(2.11) beschreiben. Eine Anpassung nach der Methode der kleinsten Quadrate ergibt folgende Parameterwerte:

$$\begin{aligned} \nu_0(T=0) &= 2359.5 \pm 0.2 \text{ MHz} \\ C &= 0.27 \pm 0.07 \\ \theta_D &= 273 \pm 26 \text{ K} \end{aligned} \quad (4.1)$$

Eine ähnlich gute Anpassung ist auch mit Gl.(2.20), welche die Kopplung an eine einzelne Gitterschwingung beschreibt, möglich. Sie ergibt für die Phononfrequenz $\nu_P = (3.6 \pm 0.3) 10^{12} \text{ Hz}$. Alleine aufgrund der vorhandenen Daten ist es nicht möglich, zwischen den beiden Modellen zu unterscheiden. Es ist jedoch

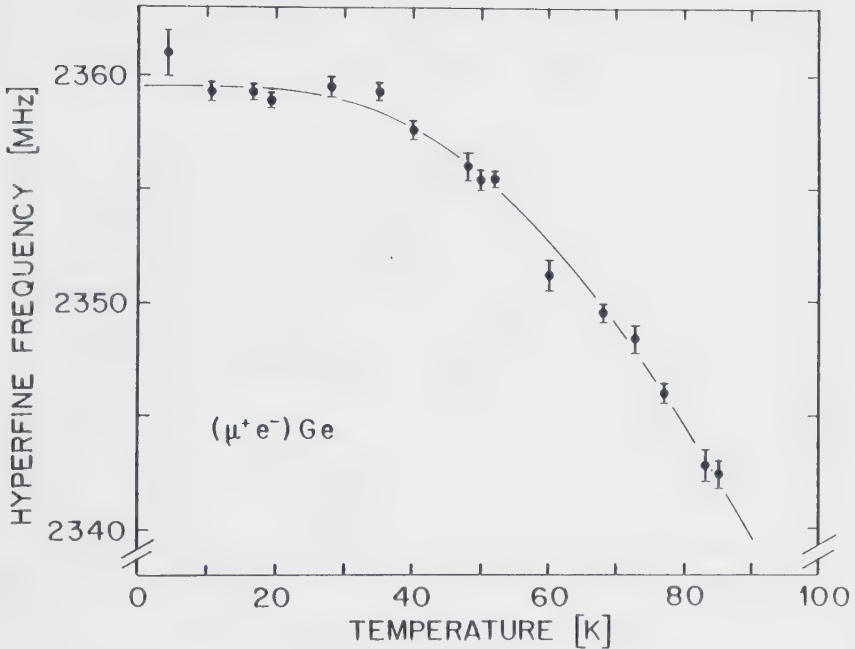


Abb. 4.2: Gemessene Hyperfeinfrequenz ν_0 für Mu in Ge als Funktion der Proben­temperatur. Die durchgezogene Linie ist nach dem Debye-Modell Gl.(2.11) mit den angepassten Parameterwerten aus Gl.(4.1) berechnet.

festzustellen, dass die Annahme, nur eine Gitterschwingung sei für die Temperaturabhängigkeit der HFWV verantwortlich, keine rechte physikalische Grundlage hat. Zudem liegt ν_p in einem Bereich, in dem die Phononzustandsdichte von Ge [37] kein auffälliges Maximum zeigt. Auch kann ν_p nicht mit den optischen Phononen, die Frequenzen von ca. $8-9 \times 10^{12}$ Hz haben, in Zusammenhang gebracht werden.

Die Si-Daten (Abb. 4.3) lassen sich wegen des lokalen Maximums bei 80 K offensichtlich nicht durch eine der in Kap. 2.1 angegebenen Gleichungen beschreiben. Neben den bisher alleine berücksichtigten dynamischen Einflüssen auf die HFWV besteht

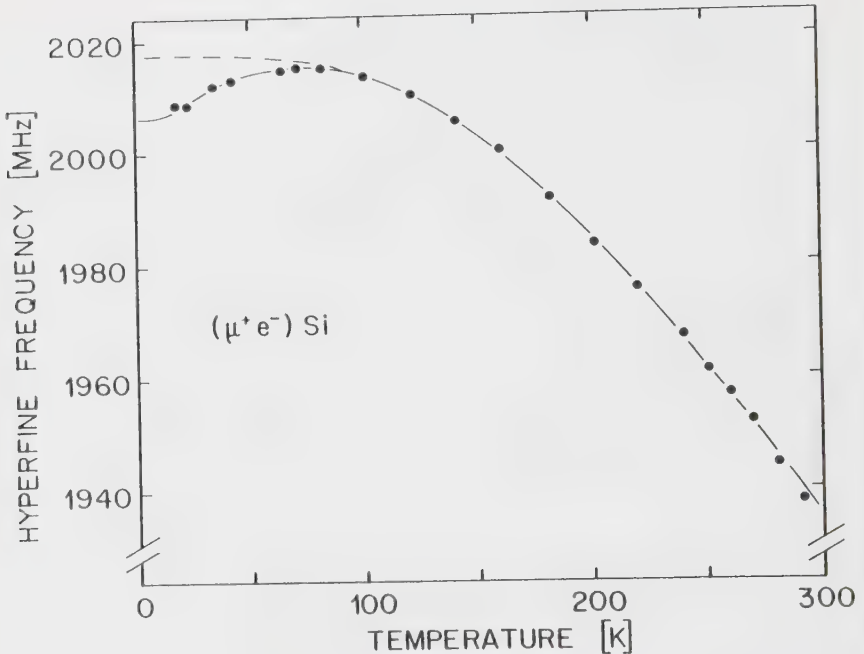


Abb. 4.3: Gemessene Hyperfeinfrequenz ν_0 für μ in Si als Funktion der Proben­temperatur. Typische Fehler der Messwerte sind zwei bis vier mal kleiner als die Grösse der Punkte. Die durchgezogene Linie ist nach Gl.(4.5) mit den Parameterwerten aus Gl.(4.6) berechnet. Die gestrichelte Kurve ist eine Extrapolation aufgrund einer Anpassung der Daten aus dem Bereich 100 – 300 K an das Debye-Modell (Gl.(2.11)).

prinzipiell noch die Möglichkeit, dass sich die HFWW durch die thermische Gitterausdehnung ändert. Der Temperaturverlauf der Gitterkonstanten (siehe Abb. 4.4) scheint einen solchen Zusammenhang nahezulegen. Wir betrachten dazu den in Gl.(2.11) auftretenden Vorfaktor $\nu_0(0)$ als eine Funktion der Gitterkonstanten a und entwickeln für kleine Änderungen $\delta a(T)$ bis zur ersten Ordnung. Gl.(2.11) erhält dann die Form

$$v_0(T) = \left[v_0 + \frac{\partial v_0}{\partial a} \delta a(T) \right] \left[1 - c \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} \right] \quad (4.2)$$

Es wurde untersucht, ob sich damit die Daten von Abb. 4.3 anpassen lassen. Dabei wurde $\partial v_0 / \partial a$ als zusätzlicher Parameter behandelt und $\delta a(T)$ wurde einer Tabelle entnommen [38]. Es zeigte sich aber, dass damit Gl. (4.2) die Si-Daten nicht beschreiben kann. Selbst für eine eingeschränkte Datenmenge aus dem Intervall 18 - 120 K ergab sich nur eine sehr schlechte Anpassung und ein unphysikalisch grosser Wert $\partial v_0 / \partial a \sim 70000 \text{ MHz}/\text{\AA}$. Das Druckexperiment (Kap. 4.2), dessen Ergebnis hier schon vorweggenommen sei, zeigte sogar, dass Gitterausdehnung die HFWW nur sehr wenig ändert und daher zur Erklärung des nichtmonotonen Verlaufs von $v_0(T)$ nicht in Frage kommt.

Die eingeschränkte Datenmenge aus dem Intervall $100 \leq T \leq 290 \text{ K}$ lässt sich gut an das Debye-Modell Gl. (2.11) anpassen. Es ergibt sich mit $\theta_D \approx 700 \text{ K}$ auch ein vernünftiger Wert für die Debye-Temperatur, denn er ist vergleichbar mit der (temperaturabhängigen) Debye-Temperatur aus Wärmekapazitätsmessungen, die

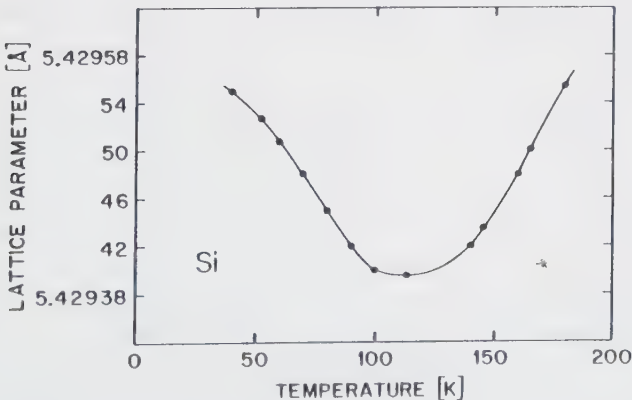


Abb. 4.4: Gitterkonstante a von Si nach Ref. [39].

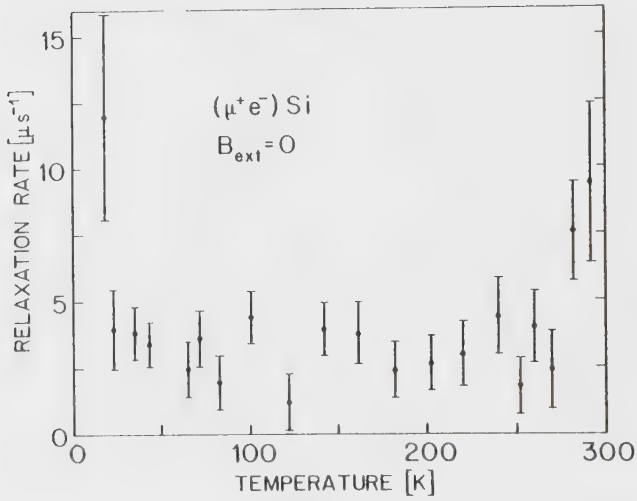


Abb. 4.5: Dämpfungsrate λ des direkten Uebergangs von Mu in Si.

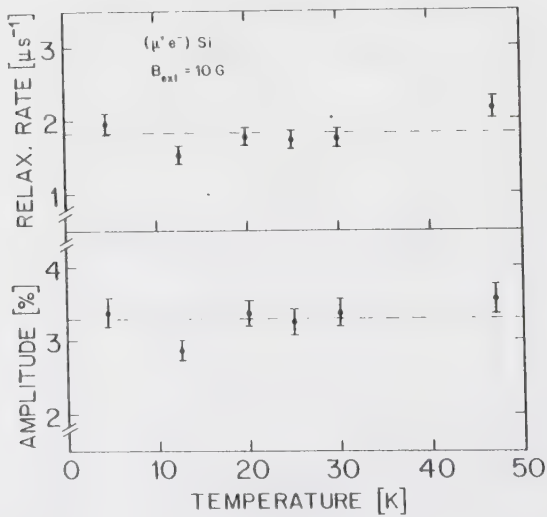


Abb. 4.6: Dämpfungsrate und Amplitude des Triplet-Signals von Mu in Si bei einem äusseren Feld von 10 Gauss.

in diesem Intervall zwischen 600 K und 650 K variiert [37]. Wir wollen daher annehmen, dass für $T > 100$ K die durch akustische Phononen induzierte Änderung der HFWW den Hauptbeitrag zum Verlauf von $\nu_0(T)$ liefert und dieser gut durch das Debye-Modell beschrieben wird. Für $T < 100$ K ist es dann notwendig, einen weiteren Prozess einzuführen. Um dafür einen Ansatz zu finden, sollen noch folgende Beobachtungen berücksichtigt werden:

a) Das Signal des direkten Uebergangs von Mu in Si verschwindet unterhalb 18 K durch plötzlich einsetzende, starke Dämpfung (siehe Abb. 4.5). Spektren, die bei 10 K und 12 K aufgenommen wurden, zeigten kein Signal des direkten Uebergangs.

b) Messungen von Bucci et al. [40] mit der Zweifrequenzen-Methode im Tieftemperaturbereich bis 60 mK ergaben eine temperaturabhängige Dämpfungsrate λ der Triplettfrequenz von Mu in Si ($B = 6$ Gauss). Für $T < 0.5$ K war $\lambda = 4 \mu\text{s}^{-1}$ konstant, nahm dann zwischen 0.5 K und 5 K auf $\lambda = 2 \mu\text{s}^{-1}$ ab und blieb bei diesem Wert wieder konstant bis 50 K. Die Autoren suchten auch nach einem anisotropen Anteil der HFWW und behaupten, dass dieser kleiner als 0.05% des isotropen Anteils ist.

c) Unsere eigenen Messungen zeigten für $4.5 \text{ K} \leq T \leq 50 \text{ K}$ und Magnetfelder bis 220 Gauss keine auffälligen Anomalien der Triplettssignale. Diese Messungen wurden mit unserer "normalen" μSR -Apparatur durchgeführt. Es wurde derselbe Si-Kristall wie für die Messungen des direkten Uebergangs verwendet. Amplitude und Dämpfungsrate λ für $B = 10$ Gauss sind in Abb. 4.6 dargestellt. Innerhalb eines statistischen Fehlers von $\pm 0.5 \mu\text{s}^{-1}$ ist λ auch feldunabhängig.

Alle diese Beobachtungen lassen sich konsistent erklären, wenn man annimmt, dass Mu in Si diffundiert und dabei auf mindestens zwei nicht gleiche Plätze gelangt. Zunächst zu Punkt a) und c): Ist der Unterschied der Hyperfeinfrequenz für die verschiedenen Plätze $\delta\nu_0$, so ergibt das eine Änderung der Triplettfrequenzen nach Gl. (2.48) ($\delta \neq 0$) in erster Ordnung um

$$\delta\nu_{12} = -\delta\nu_{23} \sim \frac{x^2}{4} \delta\nu_0, \quad (4.3)$$

wobei

$$x = \Gamma_B / (h\nu_0) = 2.82 \text{ MHz/G} \times B/\nu_0 \quad (4.4)$$

auch bei $B = 200$ Gauss noch klein ist. Ein $\delta\nu_0 \approx 10$ MHz macht den direkten Uebergang unbeobachtbar, falls die mittlere Sprungzeit $\tau_c \gtrsim 0.01 \mu\text{s}$ wird. Die damit maximal mögliche Dämpfungsrate ($\tau_c \rightarrow \infty$) der Triplettsignale bei 200 Gauss ist aber nur $\pi\delta\nu_{12} \approx 0.5 \mu\text{s}^{-1}$. Zu Punkt c) ist zu bemerken, dass anscheinend bereits bei 1 K Mu in Si beweglich wird und dass dabei kleine magnetische Störungen wie z.B. Wechselwirkungen mit den Kernspins der ^{29}Si -Isotope ausgemittelt werden. Das Temperaturverhalten der Hyperfeinfrequenz (Abb. 4.3) erklärt sich nun folgendermassen: Damit der direkte Uebergang beobachtbar ist, muss $\tau_c \lesssim 10 \mu\text{s}^{-1} / (\pi\delta\nu_0)^2$ sein. Die gemessene Frequenz ist ein Mittelwert, und jeder Platz ist entsprechend einem Boltzmann-Faktor besetzt. Der Einfachheit halber wollen wir nur zwei Plätze mit gleicher Häufigkeit annehmen. Der thermische Mittelwert ist dann durch Gl.(2.21) gegeben. Nehmen wir weiter an, dass die durch Phononen induzierte Verschiebung der HFWW für beide Plätze gleich ist und durch das Debye-Modell Gl.(2.11) beschrieben wird, so ergibt sich für die vollständige Temperaturabhängigkeit

$$\nu_0(T) = \left[\nu_0(0) + \frac{\delta\nu_0}{e^{\theta_D/T} + 1} \right] \left[1 - C \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} \right], \quad (4.5)$$

wobei $\theta_B = E_1 - E_2$ den Energieunterschied für die beiden Plätze bezeichnet. Diese Formel lässt sich gut an die Daten anpassen. Für die Parameter ergaben sich folgende Werte:

$$\begin{aligned} \nu_0(0) &= 2006.3 \pm 2.0 \text{ MHz} \\ \delta\nu_0 &= 31 \pm 3 \text{ MHz} \\ \theta_D &= 55 \pm 14 \text{ K} \\ C &= 0.68 \pm 0.05 \\ \theta_D &= 655 \pm 25 \text{ K} \end{aligned} \quad (4.6)$$

Die durchgezogene Linie in Abb. 4.3 wurde mit diesen Werten berechnet. Die Messungen nach der Zweifrequenzen-Methode bei 4.4 K ergaben eine Hyperfeinfrequenz $\nu_0(4.4\text{ K}) = 2008 \pm 2\text{ MHz}$, die kompatibel ist mit $\nu_0(0)$ aus Gl.(4.6). Der gefundene Wert für θ_D stimmt gut überein mit der Debye-Temperatur aus Wärmekapazitätsmessungen.

Die Aufspaltung $\delta\nu_0$ sollte nach Gl.(4.3) zu einer feldabhängigen Dämpfungsrate λ_B der Triplettsignale führen. Aus den Daten von Bucci et al. folgt jedoch im Rahmen des vorgeschlagenen Modells, dass für $T = 4\text{ K}$ die Sprungzeit $\tau_c \approx 0.1\text{ }\mu\text{s}$ ist. Auch bei 200 Gauss ist der zu erwartende Effekt mit $\lambda_B \sim (\pi\delta\nu_{12})^2/\tau_c \approx 0.3\text{ }\mu\text{s}^{-1}$ noch kleiner als die statistische Unsicherheit der vorhandenen Daten. Zur Erklärung der beobachteten Dämpfung des direkten Uebergangs bei 18 K ist bei dieser Temperatur $\tau_c \approx 1\text{ ns}$ notwendig.

Die Werte für $\delta\nu_0$ und θ' sollten nur als Abschätzung der Größenordnung betrachtet werden, da sie von der Annahme abhängen, dass nur zwei Plätze mit gleicher Häufigkeit vorkommen. Eine in dieser Hinsicht weitergehende Information kann aus den vorliegenden Daten nicht gezogen werden.

Ueber die Frage, welcher Art die verschiedenen Plätze für Mu sind, kann zur Zeit nur spekuliert werden. Wir wollen jedoch kurz die folgende Idee [41] diskutieren. Danach sind diese Plätze kristallografisch äquivalent und unterscheiden sich nur dadurch, dass die benachbarten Si-Atome verschiedene Masse haben. Um eine konkrete Konfiguration vor Augen zu haben, nehmen wir an, dass Mu sich auf einem Tetraederplatz befindet. Aus der Isotopenzusammensetzung von Si (92.2% ^{28}Si , 4.7% ^{29}Si und 3.1% ^{30}Si) folgt dann, dass im Mittel in ca. 30% der Fälle einer der nächsten Nachbarn NN eines der beiden schwereren Isotope ist und in den restlichen 70% alle vier NN aus ^{28}Si bestehen. Unterschiedliche Masse eines NN bedeutet eine Änderung der Schwingungsamplitude und impliziert eventuell eine kleine Verschiebung von Mu aus seiner normalen Gleichgewichtslage. Es

erscheint nicht unvernünftig, dass damit die kleine Verschiebung in der HFWW von $\delta v_0/v_0 = 0.015$ und der Energieunterschied von $k_B \theta'' \approx 4$ meV für die verschiedenen Plätze erklärt werden kann.

Es bleibt noch zu erklären, wieso in Ge kein lokales Maximum für $v_0(T)$ beobachtet wurde. Natürliches Ge besteht aus fünf verschiedenen Isotopen ähnlicher Häufigkeit und unterscheidet sich in dieser Beziehung daher stark von Si. Damit sind sehr viele verschiedene Umgebungen für Mu in Ge möglich. Besteht zwischen der Energie und der Verschiebung der HFWW keine eindeutige Korrelation, so ist auch keine systematische Verschiebung für v_0 zu erwarten.

Einen kleinen Hinweis auf ein Einfrieren der Mu-Diffusion in Ge ergibt sich aus einer Messung bei 4.2 K, die eine grosse Dämpfungsrate $\lambda \approx 10 \pm 4 \mu s^{-1}$ für den direkten Uebergang ergab. Dies erklärt auch den ungewöhnlich grossen Fehler für den 4.2 K Punkt in Abb. 4.2. Bei derselben Temperatur und für die gleiche Probe wurde dagegen für die Triplettsignale $\lambda \approx 0.3 \mu s^{-1}$ gemessen [42]. Bei höheren Temperaturen wurden keine grösseren Abweichungen der beiden Dämpfungsraten beobachtet.

Auch ohne grosse Phantasie scheint die Vermutung naheliegend, dass bei tiefen Temperaturen ($T \lesssim 1$ K) noch einige interessante Experimente mit Mu in Si und Ge möglich sind.

4.2 Mu in Si, Druckabhängigkeit

Wie bereits in Kap. 4.1 ausgeführt, kann die thermische Gitterausdehnung einen Beitrag zur Aenderung der HFWW als Funktion der Temperatur liefern. Zur Interpretation von $v_0(T)$ ist es daher notwendig, dass die Aenderung von v_0 mit der Gitterkonstanten a bei konstanter Temperatur T bekannt ist. Zu diesem Zweck wurde die Druckabhängigkeit von v_0 für Mu in Si bei $T = 273$ K gemessen.

Als Probe wurde ein Si-Kristall, p-Typ, mit ca. $1 \times 10^{12}/cm^3$ elektrisch aktiven Verunreinigungen und 20 mm Durchmesser sowie

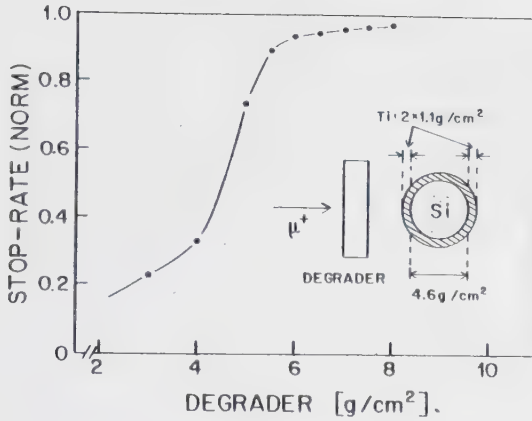


Abb. 4.7: Rate der in Druckzelle und Probe gestoppten Myonen, normiert auf die einfallenden Myonen, als Funktion der Moderatordicke.

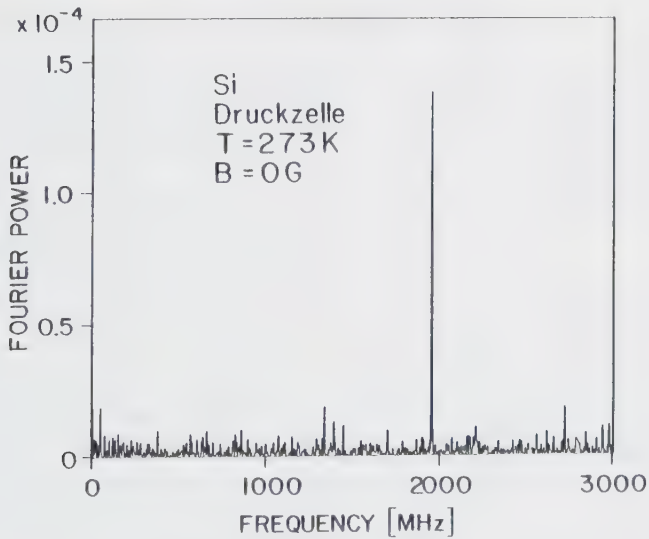


Abb. 4.8: Frequenzspektrum nach einer Messung an Si bei 273 K. Die Probe war in der Druckzelle eingebaut. Die Linie bei 1950 MHz entspricht dem direkten Uebergang.

25 mm Länge benutzt. Die verwendete Druckzelle ist in Kap. 3.6 beschrieben worden. Abb. 4.7 zeigt die auf alle einfallenden Myonen normierte Myonstopprate als Funktion der Moderatorordicke (μE2 -Areal, 125 MeV/c Myonimpuls). Wie ersichtlich, beträgt die Breite der Stoppverteilung ca. 2 g/cm^2 . Da die Flächendichte der Si-Probe 4.6 g/cm^2 und die einer Wand der Zelle 1.1 g/cm^2 betrug, konnte eine Einstellung gefunden werden, bei der ca. 70 - 80% der Myonen in der Probe gestoppt wurden. Letzter Abschätzung ergab sich aus der Amplitude des Triplettsignals bei kleinem angelegtem Feld.

Die zeitbestimmenden Detektoren, die für diese Messungen verwendet wurden, sind in Abb. 3.2a und Abb. 3.4 ersichtlich. Der Szintillator für E_t hatte 3 cm Durchmesser. Abb. 4.8 zeigt ein Frequenzspektrum aus einer Messung, bei der die Si-Probe in der Druckzelle eingebaut war. Aus den Amplituden ergab sich mit Gl.(3.4) für die apparative Zeitauflösung $\Delta t = 200 \pm 10 \text{ ps FWHM}$.

Da nur kleine Verschiebungen von ν_0 mit dem Druck p zu erwarten waren, wurde einige Sorgfalt auf die Vermeidung systematischer Fehler verwendet. Die Temperaturschwankungen während den Messungen wurden mit einem Schreiber aufgezeichnet und waren kleiner als 0.1 K. Da mit den Daten aus Abb. 4.3 folgt, dass $\partial \nu_0 / \partial T (T = 273 \text{ K}) = -0.55 \text{ MHz/K}$, konnte dadurch kein nennenswerter Fehler entstehen. Für jeden Druckpunkt wurden vier Spektren aufgenommen. Nach jeder Einzelmessung wurde der Druck geändert und eine Zeitkalibration durchgeführt.

Die Spektren wurden einzeln ausgewertet und aus den Ergebnissen gewichtete Mittelwerte gebildet. Durch dieses Verfahren war es möglich, die Einflüsse aus Temperatur- und Kalibrationschwankungen zu kompensieren. Abb. 4.9 zeigt die Resultate. Offensichtlich ist keine signifikante Änderung von ν_0 mit p feststellbar. Eine Anpassung an eine Gerade ergab die folgenden Parameterwerte:

$$\begin{aligned} \partial \nu_0 / \partial p (T = 273 \text{ K}) &= -0.12 \pm 0.13 \text{ MHz/kbar} \\ \nu_0 (T = 273 \text{ K}, p = 0) &= 1950.21 \pm 0.11 \text{ MHz} \end{aligned} \quad (4.7)$$

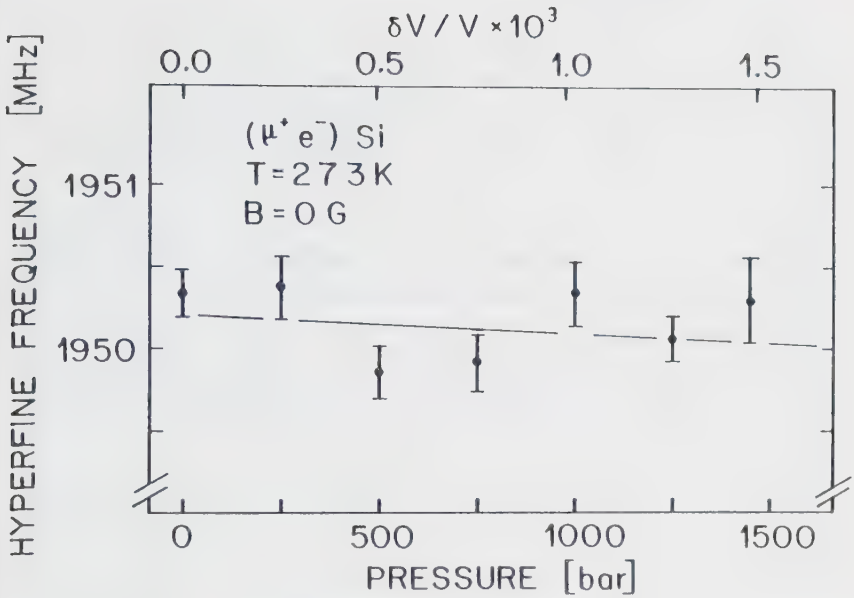


Abb. 4.9: Gemessene Hyperfeinfrequenzen ν_0 von μ in Si bei konstanter Temperatur $T = 273 \text{ K}$ als Funktion des äusseren Druckes bzw. der relativen Volumenänderung.

Die Ableitung lässt sich mit Hilfe des Kompressionsmoduls von Si ($K = 980 \text{ kbar}$) [43] umrechnen.

$$\frac{1}{\nu_0} \frac{\partial \nu_0}{\partial a} = 0.078 \pm 0.084 \text{ \AA}^{-1} \quad (4.8)$$

Die durch den maximalen Druck von 1.5 kbar erzeugte Änderung der Gitterkonstanten a ist etwa doppelt so gross, wie die Änderung von a durch thermische Ausdehnung zwischen 120 K und 300 K. Damit wird deren Vernachlässigung in Kap. 4.1 vollkommen gerechtfertigt.

4.3 Mu^* in Diamant, Temperaturabhängigkeit

Für die Messung der Temperaturabhängigkeit der HFWW des anomalen Myoniums Mu^* in Diamant [7] stand eine Pulverprobe mit 10 g zur Verfügung. Das Material war vom Typ IIa, charakterisiert als der reinste in der Natur vorkommende Diamant. Die Korngrösse war 1 - 6 μm .

Ähnlich wie in Si [6] und Ge [5] wird Mu^* in Diamant durch eine axialsymmetrische HFWW mit der Symmetrieachse parallel zu einer der vier äquivalenten [111] Achsen beschrieben. Nach den Gleichungen (2.42) und (2.43) erwartet man daher ohne angelegtes Magnetfeld drei Uebergangsfrequenzen. Das Mittel über alle Winkel von Gl. (2.42) ergibt die zeitabhängige Myonpolarisation für eine Pulverprobe:

$$P(t) = \frac{1}{3} \left(\frac{1}{2} + \cos(\omega_1 t) + \cos(\omega_2 t) + \frac{1}{2} \cos(\omega_3 t) \right) \quad (4.9)$$

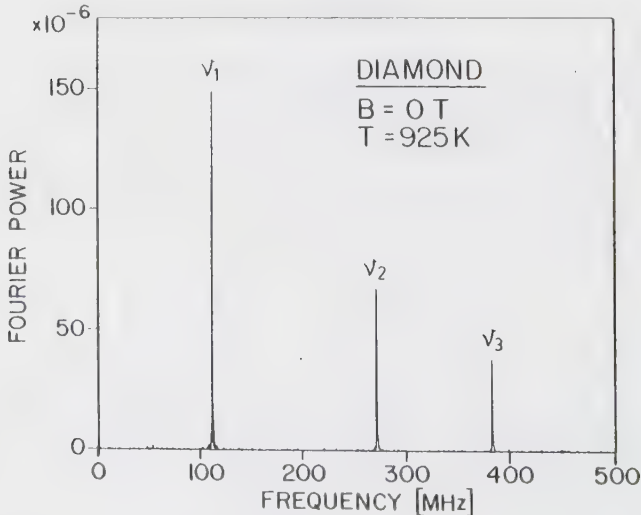


Abb. 4.10: Frequenzspektrum nach einer Messung an Diamantpulver bei 925 K. Die drei Linien sind charakteristisch für Mu^* im Nullfeld.

Das Frequenzspektrum in Abb. 4.10 zeigt die entsprechenden drei Linien.

Da alle Frequenzen kleiner als 400 MHz sind, wurden die Messungen mit unserer "normalen" Apparatur durchgeführt. Das Erdfeld wurde durch drei Paare aufeinander senkrecht stehender Nullfeldspulen kompensiert. Das Restfeld am Probenort war kleiner als 20 mG. Für eine Pulverprobe bewirkt dieses Feld eine symmetrische Verbreiterung der Frequenzen ν_1 und ν_2 um $|\delta\nu| \leq 0.04$ MHz, jedoch so, dass die Zentren der Linien nicht verschoben werden. ν_3 ist innerhalb 0.001 MHz feldunabhängig für $B \leq 0.3$ Gauss. Somit ist für alle drei Frequenzen keine systematische Verschiebung durch das Restfeld zu befürchten.

Die Messungen wurden im Temperaturbereich 4.2 K bis 925 K durchgeführt. Unterhalb Raumtemperatur RT wurde ein Helium-Durchflusskryostat verwendet. Für die Messungen oberhalb RT wurde das Pulver in Cu-Folie eingepackt und in einem Hochvakuumofen geheizt. Pro Messpunkt wurden ca. 3×10^7 gute Ereignisse gesammelt.

Die aus Gl.(2.43) folgende Relation $\nu_3 = \nu_1 + \nu_2$ war stets gut erfüllt. Für $T > 400$ K ergaben sich jedoch grosse Abweichungen zu den aus Gl.(4.9) folgenden Amplitudenverhältnissen, auch bei Berücksichtigung der apparativen Zeitauflösung von ca. 1 ns. Zudem wurde eine dramatische Zunahme der Gesamtamplitude für Mu^* beobachtet. Diese Phänomene wurden als Hinweis auf einen Uebergang $\text{Mu} \rightarrow \text{Mu}^*$ in Diamant interpretiert und sind in Ref.[7] und Ref.[44] beschrieben.

Die nach Gl.(2.43) aus den gemessenen Frequenzen berechneten Hyperfeinparameter sind in Abb. 4.11 als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Daten wurden an zwei Funktionen in der Form von Gl.(2.11) mit zwei Kopplungskonstanten C_{II}, C_I und einer Debye-Temperatur θ_D durch Minimalisierung eines χ^2 angepasst.

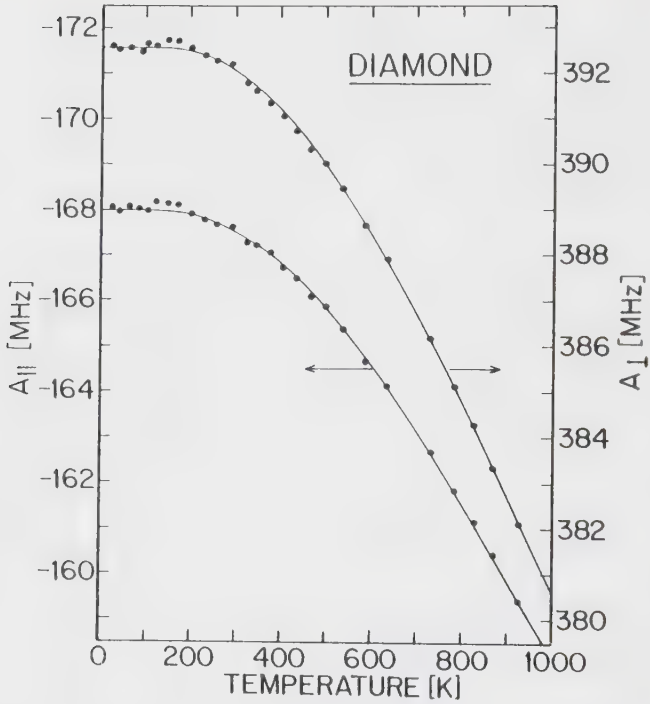


Abb. 4.11: Hyperfeinparameter $A_{\parallel}, A_{\perp}$ in Frequenzeinheiten für Mu^* in Diamant als Funktion der Temperatur. Die durchgezogenen Linien sind nach dem Debye-Modell mit angepassten Parameterwerten (Gl. (4.10)) berechnet.

Dies ergab die folgenden Parameterwerte:

$$\begin{aligned}
 |A_{\perp}(0)|/h &= 392.59 \pm 0.06 \text{ MHz} \\
 |A_{\parallel}(0)|/h &= 167.98 \pm 0.06 \text{ MHz} \\
 C_{\perp} &= 0.38 \pm 0.02 \\
 C_{\parallel} &= 0.73 \pm 0.04 \\
 \Theta_D &= 1900 \pm 50 \text{ K}
 \end{aligned}
 \tag{4.10}$$

Die Kurven in Abb. 4.11 sind mit diesen Werten berechnet worden.

Der gefundene Wert für Θ_D stimmt gut überein mit der mittleren Debye-Temperatur aus Wärmekapazitätsmessungen ($\Theta_D = 1860 \text{ K}$) [45] für unseren Temperaturbereich. Dies ist um so bemerkenswerter, als für $300 \text{ K} \lesssim T \lesssim 900 \text{ K}$ die kalorimetrische Debye-Temperatur praktisch konstant ist.

Eine Anpassung an Gl. (2.20) (Einstein-Modell) nach einem ähnlichen Verfahren wie oben ergibt die Parameterwerte

$$\begin{aligned} |A_{\perp}(0)|/h &= 392.53 \pm 0.07 \text{ MHz} \\ |A_{\parallel}(0)|/h &= 167.94 \pm 0.08 \text{ MHz} \\ C'_{\perp} &= 0.081 \pm 0.004 \\ C'_{\parallel} &= 0.156 \pm 0.008 \\ \Theta' &= 1310 \pm 40 \text{ K} \end{aligned} \quad (4.11)$$

und ein signifikant schlechteres χ^2 als das Debye-Modell. Zudem zeigt die Phononzustandsdichte von Diamant [37] bei der gefundenen Frequenz $\nu = k_B \Theta'/h = 2.7 \times 10^{13} \text{ Hz}$ eher ein Minimum als eine auffällige Spitze und die optischen Phononen liegen zwischen 3.5 und $4.0 \times 10^{13} \text{ Hz}$. Wir wollen daher im weiteren dem Debye-Modell den Vorzug geben.

Bei der Auswertung wurde nicht berücksichtigt, dass auch die thermische Gitterausdehnung einen Beitrag zur Temperaturabhängigkeit der HFWW liefern kann. Dazu wäre im Prinzip ein Experiment mit hohem Druck notwendig. Wir können diese Vernachlässigung wie folgt rechtfertigen. Blazey et al. haben die Temperaturabhängigkeit der HFWW von Mu^* in Si zwischen 5 K und 150 K gemessen. In diesem Bereich zeigt Si eine nichtmonotone Variation der Gitterausdehnung (siehe Abb. 4.4), die sich in ihren Daten nicht widerspiegelt. Die Autoren schliessen daraus, dass Gitterausdehnung keinen bedeutenden Beitrag zum beobachteten Effekt liefern kann. Da Diamant einen monotonen Verlauf der Gitterausdehnung zeigt, ist dieses Argument leider nicht übertragbar. Der thermische Ausdehnungskoeffizient von Diamant ist jedoch noch kleiner als von Si. Die Ähnlichkeit von Mu^* in den beiden Substanzen legt es daher nahe, dass auch in Diamant die HFWW durch thermische Ausdehnung nur wenig beeinflusst wird.

4.4 Myonium in Quarz

Myonium in Quarz hat mit 4.5 GHz die grösste bekannte μ^+ SR-Übergangsfrequenz ohne grosse angelegte Felder. Es zeigte sich, dass auch für diesen extremen Fall die direkte Methode mit Erfolg angewendet werden kann. Quarz ist auch eine der wenigen Substanzen, in denen Myonium und atomarer Wasserstoff auf einem Zwischengitterplatz unzweideutig beobachtet wurden. Es ist daher von besonderem Interesse, genaue Werte für die Myonium-HFWW - Parameter zu haben, die dann mit den ESR-Ergebnissen verglichen werden können.

Die Beobachtbarkeit des direkten Übergangs in Quarz hängt in besonders delikater Weise von der apparativen Zeitauflösung Δt ab, da bei 4.5 GHz Δt wesentlich kleiner als 200 ps FWHM sein muss. Die für diese Messungen verwendeten zeitbestimmenden Detektoren und ihre Anordnung sind aus Abb. 3.4 und Abb. 3.2b ersichtlich. Als Szintillator für den E_t - Detektor wurde eine Scheibe mit 20 mm Durchmesser benutzt. Die XP 2020 - Photomultiplier wurden aus einer Menge von 10 Stück ausgewählt. Als Kriterium hierfür galt die beste, mit einer ^{60}Co - Quelle erreichbaren Zeitauflösung (~ 150 ps FWHM). Das in Abb. 3.7 gezeigte prompte Spektrum für Myonen wurde mit dieser Anordnung aufgenommen und ergab $\Delta t = 110$ ps FWHM.

Als Probe wurde ein Quarz-Kristall (Tieftemperatur Phase) mit 15 mm Dicke und $25 \times 30 \text{ mm}^2$ Querschnittsfläche verwendet. Die c-Achse war senkrecht zur Anfangsrichtung der Myonpolarisation. Für die Messungen der hohen Frequenzen wurde die zeitliche Kanalbreite auf ca. 22.4 ps eingestellt, so dass die Spektren insgesamt 170 ps lang waren. Die Rate der akkumulierten Ereignisse war 150 s^{-1} für diesen Zeitbereich. Die Zeitskala konnte auf eine absolute Genauigkeit von ± 50 ppm kalibriert werden. Während den Messungen war die Stabilität für die Zeitskala ± 35 ppm und für den Zeitnullpunkt besser als $\pm 1/2$ Kanal.

Abb. 4.12 zeigt das Frequenzspektrum nach einer Messung bei 296 K, für die 8 h Strahlzeit aufgewendet wurde. Die

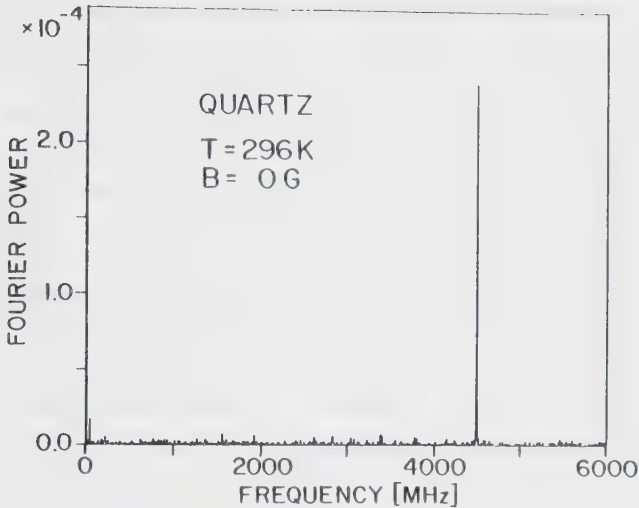


Abb. 4.12: Frequenzspektrum für Myonium in einem Quarzkristall mit der c-Achse senkrecht zur Anfangspolarisation und bei 296 K. Die Linie bei 4500 MHz entspricht einem direkten Uebergang. Die kleine Linie bei 50 MHz ist ein Untergrundsignal auf der SIN-Zyklotron-Frequenz.

statistische Standardabweichung der beobachteten Frequenz ist ± 0.17 MHz.

Nach Brewer [46] wird Myonium in Quarz bei RT durch einen axialsymmetrischen Spin-Hamilton-Operator mit der Symmetrieachse parallel zur kristallografischen c-Achse beschrieben und es gilt $(A_{\parallel} - A_{\perp})/2h = -0.412(4)$ MHz. Aus Gl.(2.42) mit $\phi = \pi/2$ und Gl.(2.43) folgt dann, dass die beobachtete Frequenz in Abb. 4.12 mit $\nu_1 = (A_{\parallel} + A_{\perp})/2h$ zu identifizieren ist. Damit ergibt sich unter Beachtung der Unsicherheit für die Zeitkalibration

$$\nu_0 := A_{\perp}/h = 4496.2 \pm 0.4 \text{ MHz} , \quad T = 296 \text{ K} . \quad (4.12)$$

Nach Gl.(2.42) haben die beiden Frequenzen ν_1 und ν_2 theoretisch die gleiche Amplitude. Da sich diese Frequenzen jedoch um einen Faktor 10^4 unterscheiden, war es experimentell nicht möglich, sie gleichzeitig zu beobachten. Aus einem Experiment mit einem auf $6.4 \mu\text{s}$ vergrößerten Zeitbereich ergab sich das in Abb. 4.13 gezeigte Frequenzspektrum. Die Frequenz $\nu_2 = |A_1 - A_2|/2h = 0.416(4) \text{ MHz}$ ist in Übereinstimmung mit dem oben zitierten Wert $|46|$.

Nehmen wir an, dass der Unterschied der gemessenen Amplituden a_1 und a_2 ausschliesslich durch den Einfluss der endlichen Zeitauflösung auf a_1 verursacht wird, so ergibt sich aus $a_1/a_2 = 0.015/0.080$ mit Gl.(3.4) eine effektive Zeitauflösung

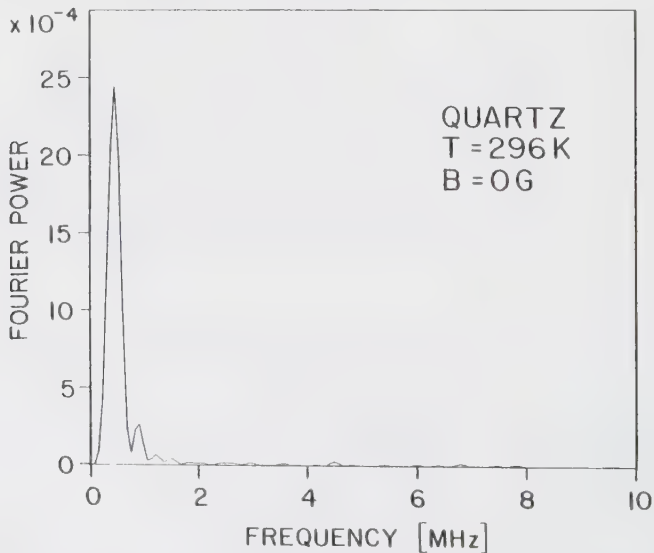


Abb. 4.13: Frequenzspektrum, erhalten aus einer Messung mit $6.4 \mu\text{s}$ langem Zeitbereich, sonst aber gleiche Bedingungen wie bei Abb. 4.12. Die Linie bei 0.41 MHz entspricht dem Intratriplett-Übergang aufgrund einer axialsymmetrischen HFWW.

$\Delta t = 152 \pm 5$ ps FWHM. Der Unterschied gegenüber dem aus der Breite des prompten Myonspektrums (Abb. 3.7) bestimmten Wert (110 ps) lässt sich folgendermassen erklären. Die Verteilung der in der Probe gestoppten Myonen ist ca. 10 mm FWHM breit. Da die Myonen Detektor M_t mit einer Geschwindigkeit von $\sim c/2$ passieren, ergibt das eine minimale Stoppszeitverbreiterung von ~ 70 ps FWHM. Positronen produzieren im Vergleich zu Myonen im Szintillator von E_t weniger Licht, woraus eine schlechtere Detektorauflösung für E_t resultiert. Der auf 12 mm Durchmesser kollimierte Myonstrahl trifft ohne Probe E_t vor allem in der Mitte, während die Auftreffpunkte der Positronen gleichmässig über E_t verteilt sind. Da die Pulslaufzeit durch den Photomultiplier von der Stelle abhängt, an der die Kathode beleuchtet wird, ist dadurch ein weiterer Beitrag zur effektiven Zeitauflösung von ca. 50 ps zu erwarten.

Eine Reduktion des Amplitudenverhältnisses a_1/a_2 könnte auch durch eine verzögerte Myoniumbildung entstehen. Nimmt man an, dass zunächst ein kurzlebiger Anfangszustand gebildet wird, der nach einem $\exp(-t/\tau)$ -Gesetz dann in Myonium umgeformt wird, so würde a_1/a_2 um den Faktor $1/(1+(\omega_3\tau)^2)^{1/2}$ reduziert werden [44]. Die Analyse der verschiedenen Beiträge zur effektiven Zeitauflösung zeigte, dass ein solcher Prozess nicht notwendig ist, um das gemessene Amplitudenverhältnis zu erklären. Es ergibt sich daraus eine Abschätzung für eine obere Grenze $\tau \leq 40$ ps. Diese kurze Zeit schliesst die Möglichkeit aus, dass die Myoniumbildung in Quarz im Zusammenhang steht mit der Diffusion eines abgestoppten und thermalisierten Myons zu einer Fehlstelle.

Abb. 4.14 zeigt als Funktion der Temperatur die beobachteten hohen Frequenzen. Bei 30 K und 69 K wurden zwei hohe Frequenzen beobachtet, die temperaturunabhängig sind, soweit sich das aufgrund von zwei Messpunkten sagen lässt. Eine Messung bei 30 K mit vergrössertem Zeitbereich (6.4 μ s) ergab das in Abb. 4.15 gezeigte Frequenzspektrum mit zwei Linien bei 1.73(2) MHz und 6.22(2) MHz. Von 190 K bis 296 K war nur eine hohe Frequenz sichtbar, die in diesem Bereich um 5.9 MHz abnahm.

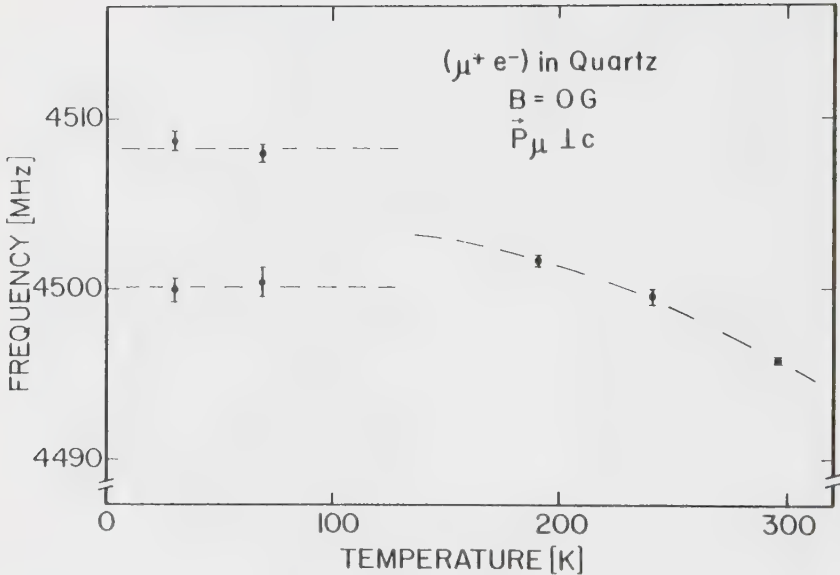


Abb. 4.14: Beobachtete, hohe Uebergangsfrequenzen in Quarz als Funktion der Temperatur. Die c-Achse des Kristalls stand senkrecht zur Anfangspolarisation. Die gestrichelten Linien verbinden Datenpunkte.

Brewer et al. [47] haben aufgrund von Messungen der tiefen Frequenzen (ähnlich Abb. 4.15) gefunden, dass Myonium μ in Quarz für $T \lesssim 80 \text{ K}$ durch einen anisotropen Spin-Hamilton-Operator der allgemeinen Form Gl. (2.37) beschrieben wird. Bereits vorher war von Perlson und Weil [48] atomarer Wasserstoff H in röntgenbestrahltem Quarz bei $T \lesssim 120 \text{ K}$ entdeckt worden. Die Richtungen der aufeinander senkrecht stehenden Hauptachsen der HFWW Gl. (2.37) für H werden wie folgt beschrieben: x ist parallel zu einer der zweizähligen Kristallachsen und z bildet einen Winkel $\alpha = 24.2^\circ$ mit der c -Achse. Die Resultate für μ sind damit kompatibel, aber da noch keine definitiven Werte publiziert wurden, müssen wir uns im weiteren auf die Hauptachsen für H stützen.

Um die experimentellen Amplituden mit Gl.(2.40) vergleichen zu können, ist noch zu berücksichtigen, dass es im Zusammenhang mit den drei zweizähligen Kristallachsen auch drei äquivalente Myoniumplätze geben muss. Nehmen wir wie im Experiment an, dass die c-Achse senkrecht zur Anfangspolarisation steht, so ist der Mittelwert der Amplituden über diese drei Plätze gegeben durch

$$\overline{P_x^2} = 1/2$$

$$\overline{P_y^2} = 1/2 \cos^2 \alpha \quad (4.13)$$

$$\overline{P_z^2} = 1/2 \sin^2 \alpha \quad .$$

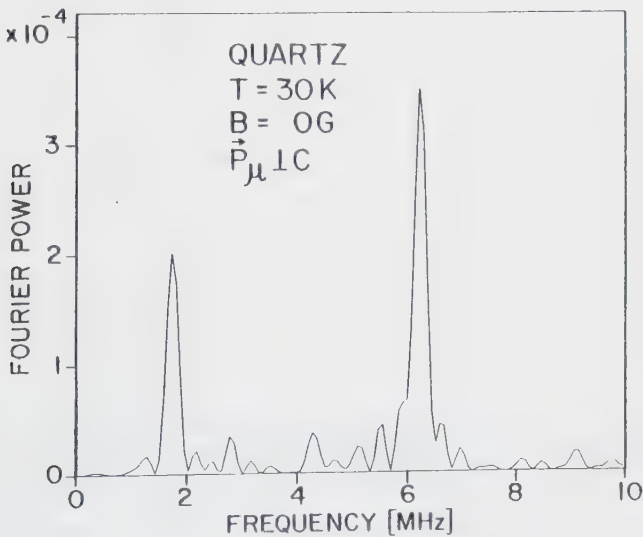


Abb. 4.15: Frequenzspektrum für Mu in Quarz bei 30 K, erhalten aus einer Messung mit 6.4 μ s langem Zeitbereich. Die c-Achse des Kristalls stand senkrecht zur Anfangspolarisation. Zwei von drei möglichen Intratriplet-Übergängen sind sichtbar.

Da mit $\alpha = 24.2^\circ \sqrt{p_z^2}$ viel kleiner ist als die anderen beiden Amplituden, wird verständlich, dass für $T \lesssim 70$ K nur je zwei tiefe und zwei hohe Frequenzen beobachtet wurden. Für andere Kristallorientierungen wurde noch eine tiefe Frequenz bei 7.9(1) MHz gesehen [47].

Durch Vergleich der gemessenen Amplituden mit Gl.(4.13) ist eine eindeutige und widerspruchsfreie Zuordnung der beobachteten Frequenzen zu den Gleichungen (2.40) möglich. Da die tiefen Frequenzen mit einer grösseren absoluten Genauigkeit als die hohen Frequenzen gemessen wurden, ist es vorteilhaft, die HFWW A in Gl.(2.37) aufzuspalten in eine isotropen Anteil

$$A_0 := \frac{1}{3} \text{Sp}(A) = \frac{1}{3} (A_{11} + A_{22} + A_{33}) \quad (4.14)$$

und einen anisotropen Anteil

$$\delta_{jj} := A_{jj} - A_0, \quad \text{Sp}(\delta) = 0. \quad (4.15)$$

Damit ist dann das experimentelle Resultat für $T = 30$ K:

$$\begin{aligned} A_0/h &= 4505.0 \pm 0.5 \text{ MHz} \\ \delta_{11}/h &= -6.45 \pm 0.02 \text{ MHz} \\ \delta_{22}/h &= +9.44 \pm 0.02 \text{ MHz} \\ \delta_{33}/h &= -2.99 \pm 0.02 \text{ MHz} \end{aligned} \quad (4.16)$$

Skaliert man die H-Resultate mit dem Verhältnis der magnetischen Momente von Myon und Proton, so stellt man fest, dass $\delta_{jj}(\text{H})/\delta_{jj}(\text{Mu}) = 1.45$ innerhalb ± 0.05 und $A_0(\text{H})/A_0(\text{Mu}) = 1.0128$. Eine ähnliche Relation war von Brewer [46] für die beobachteten tiefen Frequenzen bemerkt und interpretiert worden als Ausdruck einer grösseren Nullpunktsschwingung des Mu im Vergleich zu H.

Im Bereich 100 K - 200 K, in dem ein Uebergang von der anisotropen HFWW (Gl.(2.37)) zu einer axialsymmetrischen HFWW mit der Symmetrieachse z parallel zu c stattfindet, wurden grosse

Dämpfungseffekte beobachtet [46]. Interpretiert wurde dieses Verhalten durch die Annahme, dass μ für $T \gtrsim 100$ K diffundiert und die Anisotropie der HFWW dabei teilweise ausgemittelt wird. Extrapoliert man den schwachen Anstieg der Hochtemperaturfrequenz in Abb. 4.14 zu tiefen T , so erscheint es in der Tat, dass diese extrapolierte Frequenz ein Mittelwert der beobachteten Frequenzen ist.

Nehmen wir also an, dass μ bei hohen T zwischen den drei äquivalenten Tieftemperaturplätzen rasch hin und her hüpft und die Spinpolarisationen des Myons und des gebundenen Elektrons dabei erhalten bleiben. Dann ergibt der Mittelwert der anisotropen HFWW Gl. (2.37) eine axialsymmetrische HFWW mit z parallel c und es resultieren die folgenden Relationen:

$$\begin{aligned} \delta &:= A_{\parallel} - A_{\perp} = \frac{3}{2} \left[\delta_{33} + (\delta_{11} - \delta_{33}) \sin^2 \alpha \right] \\ A_{\perp} &= A_0 - \delta/3 \end{aligned} \quad (4.17)$$

Mit den Werten aus Gl. (4.16) und mit $\alpha = 24.2^\circ$ ergibt sich $\delta/h = -5.4$ MHz, also das richtige Vorzeichen, der absolute Wert ist aber viel zu gross im Vergleich zum experimentellen Ergebnis bei RT ($\delta/h(\text{exp.}) = -0.83$ MHz).

Für eine versuchsweise Interpretation kann man annehmen, dass μ während der Zeit zwischen zwei Sprüngen auch angeregte Schwingungszustände besetzen kann. Der Vergleich von H und μ hat ja gezeigt, dass eine grössere Schwingungsamplitude zu einer kleineren Anisotropie der HFWW führt. Die aus einem solchen Modell resultierende Temperaturabhängigkeit für δ scheint allerdings bis jetzt nicht beobachtet worden zu sein. Dies mag damit zusammenhängen, dass bei starker Dämpfung kleine Frequenzen schwierig zu messen sind.

Der in Gl. (4.12) angegebene Wert für die Hyperfeinfrequenz ν_0 bei RT stimmt nicht überein mit einem von Brown et al. [49] publizierten Wert ($\nu_0 = 4509 \pm 3$ MHz), der mit der Zweifrequenzen-Methode bestimmt wurde. Solch eine Diskrepanz könnte

sich ergeben, wenn der benutzte Spin-Hamilton-Operator nicht richtig ist. Es erschien daher notwendig, auch Messungen mit äusserem Magnetfeld zu machen.

Felder parallel zur c-Achse bis 450 Gauss wurden angelegt und aus den gemessenen Frequenzen wurde mit Gl.(2.52) die Hyperfeinfrequenz $\nu_0 = A_1/h = 4496.7 \pm 1.4$ MHz bestimmt. Innerhalb der angegebenen Fehler ergeben die beiden Methoden somit das gleiche Resultat. Der mit Gl.(2.54) berechnete Wert für den g-Faktor des Elektrons, $g_e = 2.0034 \pm 0.0035$, ist konsistent mit dem Vakuumwert.

V. DISKUSSION

Zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der HFWW von Mu und Mu^* in Diamant, Si und Ge wurde vor allem das Debye-Modell (Gl.(2.11)) benutzt. Durch eine kleine Erweiterung war es damit auch möglich, die Daten für Mu in Si anzupassen (siehe Kap.4.1). Die Verwendung von Gl.(2.11) wird zum einen gerechtfertigt durch die in Kap. 2.1 zusammengestellten theoretischen Argumente, die zeigen, dass die Form der Temperaturabhängigkeit der HFWW in der Näherung langer Wellen weitgehend unabhängig von den mikroskopischen Details ist und die Annahme eines Debye-Phononspektrums direkt auf Gl.(2.11) führt. Zum anderen ergibt sich aber vor allem eine Rechtfertigung durch die experimentellen Ergebnisse (Tab. 5.1). Zwei Tatsachen sind bemerkenswert:

- a) Alle Kopplungskonstanten C sind von der Grössenordnung 1.
- b) Die Θ_D sind innerhalb der Genauigkeit, mit der die Debye-Temperatur definiert ist, gleich Θ_D aus Wärmekapazitätsmessungen.

Tabelle 5.1: Experimentell bestimmte Konstanten für die Temperaturabhängigkeit der HFWW gemäss Gl.(2.11) (für Mu in Si Gl.(4.5)). Θ_D (Wärme) nach Ref.[45].

Mu:	$A(0)/h$ (MHz)	C	Θ_D (K)	Θ_D (Wärme) (K)	Ref.
C	3711(21)	-		1860	[7]
Si	2006(2)	0.68(5)	655(25)	625	
Ge	2359.5(2)	0.27(7)	273(26)	360*	

Mu^* :	$A_{\perp}(0)/h$ (MHz)	$A_{\parallel}(0)/h$ (MHz)	$C_{\perp}$	$C_{\parallel}$	Θ_D (K)	Ref.
C	392.59(6)	-167.98(6)	0.38(2)	0.73(4)	1900(50)	
Si	92.59(5)	16.79(1)	1.20(1)	0.52(11)	-	[25]
Ge	130.7(1.0)	26.8(1.0)	-	-	-	[5]

Die ungefähre Gleichheit aller Konstanten C lässt sich verstehen, wenn man annimmt, dass für einen Vergleich nur Materialeigenschaften berücksichtigt werden brauchen. Aus den Gleichungen (2.9), (2.10) und (2.11) folgt dann

$$C \propto 0_D^4 / (v_0^3 \mu) \quad (5.1)$$

Mit 0_D (Wärme) nach Tab. 5.1 ergibt sich damit $C(\text{Si})/C(\text{C}) = 0.9$ und $C(\text{Si})/C(\text{Ge}) = 1.4$.

Im Rahmen des Kavitätsmodells von Wang und Kittel [10] wurde für μ mit Gl. (2.12) ein expliziter Ausdruck für C angegeben. Mit $v_0^2 \partial^2 f / \partial V^2 = -0.3$ für Si aus numerischen Rechnungen (Abb. 2.2) ergibt sich $C = 0.5 \times 10^{-3}$, ein Wert der um drei Grössenordnungen zu klein ist.

Für μ in Si wurde mit einem Druckexperiment (Kap. 4.2) gezeigt, dass thermische Gitterausdehnung keinen nennenswerten Beitrag zur Temperaturabhängigkeit der HFWW liefern kann. Das Kavitätsmodell macht auch hierfür eine Vorhersage. Durch äusseren Druck wird der Kavitätsradius R verkleinert und die Änderung der Hyperfeinfrequenz δv_0 kann aus der Steigung der in Abb. 2.2 gezeigten Kurven bestimmt werden. Je nach dem, ob man die Steigung bei R_T oder an dem Radius abliest, an dem das gerechnete f mit dem experimentellen Wert $f(\text{exp.}) = 0.45$ übereinstimmt, ergibt sich $\delta v_0 = -0.9$ MHz bzw. -1.9 MHz bei einem Druck von 1.5 kbar. Beide Werte sind im Vergleich zu den experimentellen Ergebnissen (Abb. 4.9 und Gl. (4.7)) zu gross.

Wie bereits für Myonium in Quarz besprochen, ergibt die Beobachtung des direkten Uebergangs eine scharfe Abschätzung für die Myoniumbildungszeit τ . Für μ in Si und Ge ergab sich $\tau \lesssim 100$ ps. Diese Abschätzung ist interessant im Zusammenhang mit einem Vorschlag von Haller [50], wonach μ in Ge einen paramagnetischen Komplex aus einer Kohlenstoff-Verunreinigung, einem Myon und einem Elektron darstellt. Die Konzentration von Kohlenstoff (elektrisch nicht aktiv) in kommerziell erhältlichem hochreinem Ge beträgt ca. 0.01 - 0.1 ppm [51]. Um durch

Diffusion eine solche Verunreinigung innerhalb von 100 ps zu finden, müsste die Hüpfrequenz der Myonen vor dem Einfang mindestens um einen Faktor 10^3 grösser als die grösste Phononfrequenz (9×10^{12} Hz) sein. Dieses Modell kann somit mit Sicherheit ausgeschlossen werden.

Verschiedentlich wurde vorgeschlagen, dass die Zwischengitterplätze für Mu bzw. Mu^* mit den Plätzen tetraedrischer bzw. hexagonaler Symmetrie (Abb. 2.1) identifiziert werden können [6], [52]. In Kap. 4.1 wurde nun aber gezeigt, dass für Mu in Si sich alle beobachteten Anomalien bei tiefen Temperaturen konsistent erklären lassen, wenn man annimmt, dass Mu diffundiert. Behält man für Mu wegen der erforderlichen Symmetrie zur Erklärung der isotropen HFWW den Tetraeder-Platz bei, so geht der "natürliche" Diffusionsweg über einen hexagonalen Platz (siehe Abb. 2.1). Mu^* kann jedoch wegen der anisotropen HFWW für $T \lesssim 150$ K nicht diffundieren und sitzt daher in einem vergleichsweise tiefen Potentialminimum. Die beiden genannten Plätze für Mu und Mu^* sind somit nicht mit der Diffusion von Mu verträglich, und es ist daher wohl notwendig, dass für Mu^* ein anderer Platz gefunden wird.

Zur Erklärung des nichtmonotonen Verhaltens der HFWW von Mu in Si (Abb. 4.3) wurde angenommen, dass mindestens zwei verschiedene Plätze für Mu existieren. Nach der in Kap. 4.1 dargestellten Idee sollten diese Plätze kristallografisch äquivalent sein und sich nur durch die Masse der nächsten Nachbarn unterscheiden. Einen direkten experimentellen Beweis gibt es dafür zur Zeit nicht, das Modell erlaubt aber Vorhersagen, die sich im Prinzip überprüfen lassen. Zunächst sollte sich für eine Probe mit veränderter Isotopenzusammensetzung eine Verschiebung der Hyperfeinfrequenz ergeben, insbesondere im Bereich 20 K bis 100 K. Besonders interessant wäre natürlich eine isotoopenreine Probe. Für diesen Fall sollte der direkte Uebergang auch unterhalb 18 K beobachtbar sein und die HFWW sollte monoton mit der Temperatur abnehmen.

Aufgrund der Aehnlichkeit der Myoniumzustände in Si und Ge muss wohl geschlossen werden, dass auch Mu in Ge für $T \gtrsim 4$ K diffundiert. Zwei Experimente erscheinen zur Untersuchung dieser Frage naheliegend. Der direkte Uebergang sollte für $T \lesssim 4$ K durch einen ähnlichen Mechanismus wie in Si unterhalb 20 K verbreitert werden, so dass er eventuell auch unbeobachtbar wird. Für hinreichend tiefe Temperaturen sollte die Diffusion so langsam sein, dass die magnetischen Momente der zu 7.6% vorhandenen ^{73}Ge -Kerne zu einem Anstieg der Dämpfungsrate der Triplettübergänge führen. Es ist zu erwarten, dass dies bei Temperaturen der Grössenordnung 0.1 K bis 1 K geschieht.

VI. Z U S A M M E N F A S S U N G

Zur Beobachtung der Hyperfeinübergänge von Myonium ohne angelegtes Magnetfeld wurde eine μ SR-Apparatur mit hoher Zeitauflösung entwickelt. Verwendet wurden Detektoren, bestehend aus Plastiksintillatoren (NE 111) und Photomultipliern (XP 2020), sowie übliche Impuls-Elektronik. Die beste damit erreichte Zeitauflösung war 110 ps FWHM für Myonen und 150 ps FWHM in einem tatsächlichen μ SR-Experiment. Im Vergleich zur üblichen Zweifrequenzen-Methode konnte eine Steigerung der Genauigkeit für die Hyperfeinfrequenz ν_0 um ca. einen Faktor 10 erreicht werden.

Experimentell wurde die Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinwechselwirkung HFWW von normalem Myonium Mu in Si und Ge, von anomalem Myonium Mu^* in Diamant sowie von Myonium in Quarz untersucht. Durch eine Messung mit äußerem Druck bis 1.5 kbar wurde für Mu in Si gezeigt, dass thermische Gitterausdehnung keinen nennenswerten Beitrag zu den beobachteten Temperatureffekten liefern kann.

Für Mu in Ge und Mu^* in Diamant wurde eine monotone Abnahme der HFWW mit zunehmender Temperatur gemessen, die sich gut durch ein Debye-Modell beschreiben lässt. Die HFWW von Mu in Si zeigte einen nichtmonotonen Verlauf mit einem Maximum bei 80 K. Mit abnehmender Temperatur wurde bei 20 K eine starke Zunahme der Dämpfung des direkten Uebergangs beobachtet. Im Gegensatz dazu wurden bei derselben Temperatur keine auffälligen Anomalien für die Dämpfung der Triplettsignale mit angelegtem Feld festgestellt. Es ergibt sich eine konsistente Erklärung, wenn Diffusion von Mu über nichtäquivalente Plätze angenommen wird. Mit dieser Erweiterung beschreibt das Debye-Modell auch die Daten für Mu in Si gut.

Für Myonium in Quarz wurde bei 296 K eine Hyperfeinfrequenz $\nu_0 = A_{\perp}/h = 4496.2 \pm 0.4$ MHz gemessen. Mit abnehmender Temperatur bis 190 K wurde eine Zunahme um 5.9 MHz für ν_0 beobachtet.

Unterhalb 70 K wurden mehrere Hyperfeinübergänge gesehen, wodurch bestätigt wurde, dass die HFWW in diesem Bereich nicht mehr axialsymmetrisch ist. Ein Vergleich mit ESR-Resultaten für atomaren Wasserstoff in Quarz zeigt einen deutlichen Isotopieeffekt.

Die Beobachtung von Signalen mit hoher Frequenz erlaubt eine scharfe Abschätzung der mittleren Bildungszeit τ von Myonium nach dem Abstoppen eines Myons. Für Mu in Si und Ge ergab sich $\tau \lesssim 100$ ps und für Myonium in Quarz $\tau \lesssim 40$ ps.

L I T E R A T U R V E R Z E I C H N I S

- [1] IUPAP Report on Symbols, Units, and Nomenclature in Physics, *Physica A* 93, 1 (1978).
- [2] D.E. Casperson, T.W. Crane, V.W. Hughes, P.A. Souder, R.D. Stambough, P.A. Thompson, H. Orth, G. zu Putlitz, H.F. Kaspar, H.W. Reist, A.B. Denison, *Phys. Lett.* 59B, 397 (1975).
- [3] J.H. Brewer, K.M. Crowe, F.N. Gyax, R.F. Johnson, B.D. Patterson, D.G. Fleming, A. Schenck, *Phys. Rev. Lett.* 31, 143 (1973).
- [4] I.I. Gurevich, I.G. Ivanter, E.A. Meleshko, B.A. Nikol'skii, V.S. Roganov, V.I. Selivanov, V.P. Smilga, B.V. Sokolov, V.D. Shestakov, *Sov. Phys. JETP* 33, 253 (1971).
- [5] E. Holzschuh, H. Graf, E. Recknagel, A. Weidinger, Th. Wichert, P.F. Meier, *Phys. Rev. B* 20, 4391 (1979).
- [6] B.D. Patterson, W. Kündig, P.F. Meier, F. Waldner, H. Graf, E. Recknagel, A. Weidinger, Th. Wichert, A. Hintermann, *Phys. Rev. Lett.* 40, 1347 (1978).
- [7] E. Holzschuh, W. Kündig, P.F. Meier, B.D. Patterson, J.P.F. Sellschop, M.C. Stemmet, H. Appel, *Phys. Rev. A* 25, (1982) im Druck.
- [8] A.B. Denison, H. Graf, W. Kündig, P.F. Meier, *Hel. Phys. Acta* 52, 460 (1979).
- [9] G.G. Myasishcheva, Y.V. Obukhov, V.S. Roganov, V.G. Firsov, *Sov. Phys. JETP* 26, 298 (1968).

- |10| J.S. Wang, C. Kittel, Phys. Rev. B 7, 713 (1973).
- |11| K. Weiser, Phys. Rev. 126, 1427 (1962).
- |12| E. Holzschuh, S. Estreicher, W. Kündig, P.F. Meier, B.D. Patterson, J.P.F. Sellschop, M.C. Stemmet, H. Appel, Hyperfine Interactions 9, 611 (1981).
- |13| E. Šimánek, R. Orbach, Phys. Rev. 145, 191 (1966).
- |14| S.A. Al'tshuler, B.M. Kozyrev, "Electron Paramagnetic in Compounds of Transition Elements", Kap.5, John Wiley, New York (1974).
- |15| M. Altarelli, W.Y. Hsu, Phys. Rev. Lett. 43, 1346 (1979).
- |16| L. Resca, R. Resta, Phys. Rev. Lett. 44, 1340 (1980).
- |17| W.E. Pickett, M.L. Cohen, C. Kittel, Phys. Rev. B 20, 5050 (1979).
- |18| V.A. Singh, C. Weigel, J.W. Corbett, L.M. Roth, Phys. Stat. Sol. B 81, 637 (1977).
- |19| C.O. Rodriguez, M. Jaros, S. Brand, Solid State Comm. 31, 43 (1979).
- |20| A. Coker, T. Lee, T.P. Das, Hyperfine Interactions 4, 821 (1978).
- |21| T.J. Menne, Phys. Rev. B 1, 4496 (1970).
- |22| B.P. Koch, Phys. Stat. Sol. B 68, 193 (1975).
- |23| R. Calvo, R. Orbach, Phys. Rev. 164, 284 (1967).
- |24| W.T. Doyle, A.B. Wolbarst, J. Phys. Chem. Solids 36, 549 (1975).

- | 25 | K.W. Blazey, J.A. Brown, D.W. Cooke, S.A. Dodds,
T.L. Estle, R.H. Heffner, M. Leon, D.A. Vanderwater,
Phys. Rev. B 23, 5316 (1981).
- | 26 | S.G. Sligar, H. Blum, Phys. Rev. B 3, 3587 (1971).
- | 27 | Ch. Hoentzsch, J.M. Spaeth,
Phys. Stat. Sol. B 88, 581 (1978).
- | 28 | I.G. Ivanter, V.P. Smilga, Sov. Phys. JETP 27, 301 (1968).
- | 29 | J.H. Brewer, D.P. Spencer, D.G. Fleming, J.A.R. Coope,
Hyperfine Interactions 8, 405 (1981).
- | 30 | J.H. Brewer, D.S. Beder, D.P. Spencer,
Phys. Rev. Lett. 42, 808 (1979).
- | 31 | P.F. Meier, "μSR in Semiconductors", in Exotic Atoms'79,
ed. K. Crowe et al., Plenum Press, New York (1980).
- | 32 | M. Moszyński, B. Bengtson,
Nucl. Inst. Meth. 158, 1 (1979).
- | 32a | F.D. Brooks, Nucl. Inst. Meth. 162, 477 (1979).
- | 33 | W. Reichart, Programm DORA, Uni. Zürich (1981).
- | 34 | T. Butz, J. Chappert, J.F. Dufresne, O. Hartmann,
E. Karlsson, B. Lindgren, L.O. Norlin, P. Podini,
A. Yaouanc, Phys. Lett. 75A, 321 (1980).
- | 35 | H.J. Zebisch, "Festigkeitslehre", Vogel-Verlag,
Würzburg (1976).
- | 36 | B.D. Patterson, μSR-Newsletter 7, 86 (1975).
- | 37 | G. Dolling, R.A. Cowley, Proc. Phys. Soc. 88,
463 (1966).

- [38] K.G. Lyon, G.L. Salinger, C.A. Swenson,
J. Appl. Phys. 48, 865 (1977).
- [39] J.S. Shah, M.E. Straumanis,
Solid State Comm. 10, 159 (1972).
- [40] C. Bucci, R. De Renci, G. Guidi, P. Podini, R. Tedeschi,
L.O. Norlin, Hyperfine Interactions 8, 385 (1981).
- [41] P.F. Meier, private Mitteilung.
- [42] G. Balzer, Diplomarbeit, Uni. Konstanz (1979).
- [43] American Institute of Physics Handbook, 3. Auflage,
McGraw-Hill, New York (1972).
- [44] P.F. Meier, Phys. Rev. A, (1982) im Druck.
- [45] J. de Launay, "The Theory of Specific Heats and Lattice
Vibrations", in Solid State Physics, Vol.2, ed. F. Seitz,
D. Turnbull, Academic Press, New York (1956).
- [46] J.H. Brewer, Hyperfine Interactions 8, 375 (1981).
- [47] J.H. Brewer, D.P. Spencer, D.G. Fleming, J.A.P. Coope,
Hyperfine Interactions 8, 405 (1981).
- [48] B.D. Perlson, J.A. Weil, J. Mag. Res. 15, 594 (1974).
- [49] J.A. Brown, S.A. Dodds, T.L. Estle, R.H. Heffner,
M. Leon, D.A. Vanderwater, Solid State Comm. 33,
613 (1980).
- [50] E.E Haller, Vortrag beim "Second International Topical
Meeting on Muon Spin Rotation", Vancouver (1980) und
Diskussionsbeitrag in Hyperfine Interactions 8, (1981)
auf Seite 370.

- |51| C.W. Clawson, E.E. Haller, K.M. Crowe, S.S. Rosenblum,
J.H. Brewer, Hyperfine Interactions 8, 417 (1981).
- |52| Y.M. Belousov, V.N. Gorelkin, V.P. Smilga,
Sov. Phys. JETP 47, 331 (1978).

VERDANKUNGEN

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die diese Arbeit unterstützt und gefördert haben.

Besonderen Dank schulde ich meinem Lehrer Prof. W.Kündig. Seine experimentelle Erfahrung hat viel zum Gelingen der Messungen beigetragen. Trotz seiner vielfältigen Aktivitäten hatte er stets noch Zeit für ausführliche Diskussionen.

Bei meinen Kollegen P.F.Meier, B.D.Patterson und K.Rüegg bedanke ich mich für die gute und angenehme Zusammenarbeit sowie für die Hilfe bei den Messungen und für viele Anregungen. Für die kritische Durchsicht des Manuskripts danke ich besonders P.F.Meier.

W.Reichart hat mit seinem Computerprogramm den wesentlichen Beitrag zur Datenerfassung geliefert. In Notfällen war er stets zu schneller Hilfe bereit.

Für μ SR-Experimente braucht man relativ grosse Proben, deren Beschaffung manchmal nicht ganz einfach ist. Für die Diamantprobe bedanke ich mich bei Prof. H.Appel, Uni. Karlsruhe und bei Prof. J.P.F.Sellschop, University of the Witwatersrand, Johannesburg.

Meinen ehemaligen Kollegen von der Uni. Konstanz, H.Graf und A.Weidinger, danke ich für die stets gute Kameradschaft und für viele interessante Diskussionen sowie für die Ge-
Probe.

Als Experimentalphysiker lernt man eine gute Werkstatt zu schätzen. Allen Mitarbeitern unserer mechanischen Werkstatt danke ich für die perfekte und termingerechte Ausführung aller Arbeiten, auch wenn die Zeichnungen nicht immer so waren wie sie sein sollten oder die Zeit bis zur nächsten Strahlperiode manchmal sehr knapp war.

K.Blazey vom IBM-Labor, Zürich danke ich für die Hilfe während den Messungen an Quarz.

Für die saubere Anfertigung aller Zeichnungen danke ich
Hr. Crudeli und Hr. Häfeli.

Dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissen-
schaftlichen Forschung danke ich für die Anstellung und die
finanzielle Unterstützung.

LEBENS LAUF

Name	Eugen Holzschuh
Staatsangehörigkeit	Bundesrepublik Deutschland
Geburtsort	Lonsee, Kr. Ulm, BRD
Geburtsdatum	12. Juni 1949

Besuchte Schulen

1956 - 1964	Volksschule Lonsee (BRD)
1969 - 1970	Berufsaufbauschule Nürtingen (BRD)
1970 - 1973	Kolping Kolleg Friedrichshafen (BRD)
Juni 1973	Abitur
1973 - 1978	Studium der Physik an der Universität Konstanz
Dez. 1978	Diplom in Physik

Stellung

seit 1979	Wissenschaftlicher Mitarbeiter und Assistent am Physik-Institut der Universität Zürich bei Prof. W. Kündig, unter dessen Leitung die Dissertation entstanden ist.
-----------	---

Während des Studiums besuchte ich Vorlesungen und Uebungen
bei folgenden Dozenten:

Universität Konstanz: Audretch, Beste, Bolitho, Brinkmann,
Brintzinger, Bucher, Dehnen, Hoffmann, Jochims, Klein, Korn,
Läuger, Recknagel, Rehwald, Schäfke, Stolz, Stork, Watzlawek,
Weber.

Universität Zürich: P.F. Meier, Reichart.

